

TESIS CARRERA DE DOCTORADO EN FÍSICA

**APROXIMACIÓN SEMICLÁSICA EN LA  
FOTOIONIZACIÓN POR PULSOS ULTRACORTOS  
ASISTIDOS POR LÁSER**

**Ana Alicia Gramajo**  
**Doctorando**

**Dra. Renata Della Picca**  
Director

**Dr. Diego Arbó**  
Co-director

**Miembros del Jurado**

Dr. Flavio Colavecchia (Instituto Balseiro)

Dr. Axel Bruchhausen (Instituto Balseiro)

Dra. María Silvia Gravielle (Instituto de Astronomía y Física del Espacio (IAFE))

Física Atómica, Molecular y Óptica – Centro Atómico Bariloche

Instituto Balseiro  
Universidad Nacional de Cuyo  
Comisión Nacional de Energía Atómica  
Argentina



A todos aquellos que me acompañaron  
en este crecimiento personal, académico  
y espiritual.





# Índice de contenidos

<b>Índice de contenidos</b>	<b>v</b>
<b>Resumen</b>	<b>ix</b>
<b>Abstract</b>	<b>xi</b>
<b>1. Introducción</b>	<b>1</b>
1.1. Procesos multifotónicos . . . . .	3
1.2. Desarrollo de la tesis . . . . .	9
<b>2. Teoría de la interacción entre átomos y láseres</b>	<b>11</b>
2.1. Descripción clásica de un campo láser . . . . .	11
2.1.1. Soluciones de onda plana de las ecuaciones de Maxwell . . . . .	12
2.1.2. Pulsos láser cortos . . . . .	14
2.1.3. Aproximación dipolar . . . . .	16
2.1.4. Movimiento clásico de un electrón en un campo electromagnético	17
2.2. Teoría cuántica de la interacción átomo-láser . . . . .	18
2.2.1. Invariancia de gauge de la ecuación de Schrödinger . . . . .	19
2.2.2. Funciones de onda de Gordon-Volkov . . . . .	21
2.3. Cálculo de la amplitud de transición . . . . .	23
2.4. Espectro electrónico en ATI y LAPE . . . . .	28
<b>3. Energía ponderomotriz dependiente del tiempo en ATI</b>	<b>31</b>
3.1. Introducción . . . . .	31
3.2. Dependencia de la energía ponderomotriz con la envolvente e influencia en el espectro ATI . . . . .	34
3.2.1. Pulsos planos . . . . .	37
3.2.2. Pulsos con envolvente de pocos escalones: interferencia interpulso	38
3.2.3. Pulsos con envolvente continua . . . . .	43
3.3. Conclusiones . . . . .	45

<b>4. Fotoemisión asistida por láser (LAPE)</b>	<b>47</b>
4.1. Regímenes en la fotoemisión asistida por láser . . . . .	47
4.1.1. Streaking . . . . .	48
4.1.2. Sideband . . . . .	50
4.2. Modelo semiclásico en la fotoemisión asistida por láser . . . . .	51
4.2.1. Comparación con otros modelos: SFA y TDSE . . . . .	63
4.2.2. Dependencia con la intensidad . . . . .	66
4.2.3. Dependencia con el retardo temporal entre los pulsos XUV e IR . . . . .	67
4.2.4. Conclusiones . . . . .	70
<b>5. Emisión paralela y perpendicular en LAPE</b>	<b>73</b>
5.1. Emisión electrónica paralela . . . . .	73
5.1.1. Comparación con otros modelos . . . . .	76
5.1.2. Dependencia con la intensidad . . . . .	80
5.1.3. Dependencia con el retardo temporal entre los pulsos . . . . .	80
5.1.4. Dependencia con la envolvente . . . . .	82
5.2. Emisión electrónica perpendicular . . . . .	85
5.2.1. Inteferencias intra- e inter-medio-ciclo . . . . .	86
5.2.2. Comparación con otros modelos . . . . .	90
5.2.3. Dependencia con el retardo temporal entre los pulsos . . . . .	92
5.2.4. Dependencia con la intensidad del campo láser . . . . .	94
5.2.5. Patrón de interferencia intraciclo en la región tipo perpendicular . . . . .	97
5.2.6. Conclusiones . . . . .	99
<b>6. Emisión electrónica para Argón atómico e ión molecular en LAPE</b>	<b>101</b>
6.1. SCM generalizado . . . . .	101
6.2. Argón . . . . .	106
6.3. Ión molecular $H_2^+$ . . . . .	112
6.4. Conclusiones . . . . .	117
<b>7. Conclusiones generales</b>	<b>119</b>
<b>A. Unidades atómicas</b>	<b>123</b>
<b>B. Modelo semiclásico para procesos ATI</b>	<b>125</b>
<b>C. Cálculo de la fase <math>\Phi</math> en el término de interferencia interpulso</b>	<b>131</b>
<b>D. Soft photon approximation (SPA)</b>	<b>135</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>139</b>

Índice de contenidos	vii
<b>Publicaciones asociadas</b>	<b>147</b>
<b>Agradecimientos</b>	<b>149</b>



# Resumen

En esta tesis se estudia la ionización por encima del umbral (ATI) y la fotoionización asistida por láser (LAPE) de átomos y moléculas producida por campos láser ultra intensos y ultra cortos.

En primer lugar, se considera la contribución de la energía cinética promedio que adquiere un electrón libre oscilando en un campo láser al balance de energía del sistema en la ionización por encima del umbral (ATI) de hidrógeno atómico. A través de su promedio temporal, se revisa la definición de energía ponderomotriz  $U_P$ , la cual extendemos su definición para el caso de pulsos con pocos ciclos ópticos y con envolvente altamente variable en el tiempo. Formulamos un modelo semiclásico que establece una conexión entre tiempos de emisión del electrón y energía del fotoelectrón, y mostramos que algunas estructuras del espectro tienen su origen en diferentes instantes de tiempo del pulso con envolvente variable.

Luego, se extiende el modelo semiclásico (SCM) para estudiar la ionización por pulsos de dos colores, conocida como fotoemisión asistida por láser (LAPE). Se obtiene el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para la ionización del átomo de hidrógeno producida por un pulso con frecuencia en el extremo ultravioleta (XUV) en presencia de un láser con frecuencia en el infrarrojo (IR). Se logra factorizar la probabilidad de emisión como el producto de dos contribuciones diferentes que muestran la interferencia entre trayectorias clásicas del electrón originadas en un mismo ciclo óptico del láser (factor *intraciclo*) y en distintos ciclos (factor *interciclo*). Este último factor es el responsable de dar origen a *bandas laterales* siguiendo la ley de conservación de energía para absorción de un solo fotón XUV y absorción/emisión de varios fotones IR.

Se estudia el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo variando distintos parámetros del proceso LAPE, tales como la duración e intensidad de los campos XUV e IR y retardo temporal entre ellos, así como el blanco bajo estudio y la configuración geométrica de los campos. Para casos de emisión particulares, se encuentra que el espectro puede factorizarse de forma alternativa a través de dos contribuciones *intra-* e *inter-medio-ciclo*, de manera que en un ciclo óptico del láser, las trayectorias originadas en cada medio ciclo interfieren destructivamente en la absorción y/o emisión de fotones, permitiendo sólo el intercambio de un número impar o par según la simetría del estado inicial de fotones del láser IR en la formación de las *bandas laterales*.

**Palabras clave:** FOTOEMISIÓN ASISTIDA POR LÁSER (LAPE), MODELO SEMICLÁSICO (SCM), APROXIMACIÓN DE CAMPO FUERTE (SFA), EC. DE SCHRÖDINGER DEPENDIENTE DEL TIEMPO (TDSE), INTERFERENCIAS INTRA- E INTERCICLO, ESPECTRO DEL FOTOELECTRÓN

# Abstract

In this thesis, we study the above-threshold ionization (ATI) and laser-assisted photoionization (LAPE) of atoms and molecules produced by ultra-intense and ultra-short laser fields.

First, we consider the contribution of the quiver kinetic energy acquired by an electron in an oscillating electric field of a short laser pulse to the energy balance in above-threshold ionization of the hydrogen atom. Through its temporal average, we analyze the concept of ponderomotive energy  $U_P$ , which is not well defined when we consider a few-cycle laser and a highly time-dependent envelope. We formulate a semiclassical model that establishes a connection between the electron emission times with the energy spectra. We show that some structures of the photoelectron spectra born at different times of the pulse envelope.

Then, we extend the semiclassical model (SCM) to the two-color ionization known as laser-assisted photoemission (LAPE). We obtain the angle-resolved photoelectron spectra for the ionization of a hydrogen atom produced by with an extreme ultraviolet (XUV) finite laser pulse assisted by an IR laser. The emission probability can be factorized in two different contributions which involve the interference stemming from electron trajectories within the same cycle (*intracycle* factor) and the interference stemming from electron trajectories released at different cycles (*intercycle* factor). The latter factor giving rise to the *sidebands* following the energy conservation rule for the absorption of one XUV photon accompanied by sideband lines associated with an additional exchange of laser photons.

We study the dependence of the angle-resolved photoelectron spectra with different parameters of the LAPE process as the laser intensity and the XUV pulse duration, the time delay between them and different targets and geometric configurations of the XUV and IR fields. For particular emission cases, the photoelectron spectra can be factorized alternatively in two different contributions *intra-half* and *inter-half-cycle*. The interference stemming from electron trajectories released at different half cycles in one IR optical cycle interfere destructively for the absorption and/or emission of IR photons. The latter allows only the exchange of an odd or even number of IR photons to the formation of *sidebands* according to the symmetry properties for the initial state.

**Keywords:** LASER ASSISTED PHOTOEMISSION (LAPE), SEMICLASSICAL MODEL (SCM), STRONG FIELD APPROXIMATION (SFA), TIME-DEPENDENT SCHRÖDINGER EQUATION (TDSE), INTRA- AND INTERCYCLE INTERFERENCES, PHOTO-ELECTRON SPECTRA



# Capítulo 1

## Introducción

*“To get a very short pulse, you need a lot of colours.”*

— Donna Strickland-Premio Nobel 2018.

Desde la invención del láser en 1960 [1], los avances tecnológicos han permitido disminuir cada vez más la duración de los pulsos de luz y al mismo tiempo incrementar su intensidad. Hoy en día se pueden obtener intensidades superiores a los  $10^{13} \text{W/cm}^2$ , que son equiparables a la intensidad del campo eléctrico que siente el electrón en la presencia del núcleo. Cuando esta fuente de luz intensa incide en la materia se activan procesos físicos debido al intercambio, no de uno, sino de varios fotones a la vez. Estos “procesos multifotónicos” son producto de la respuesta no lineal del medio frente a la interacción con el láser.

Por otra parte a partir del año 1982 se logran pulsos con duraciones del orden de femtosegundos ( $1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$ ), comparables a la escala temporal de muchos procesos moleculares [2]. En años posteriores, se sobrepasa la barrera de los femtosegundos, obteniendo pulsos de sub-femto e incluso de attosegundos (as) (con duraciones del orden de  $10^{-18}\text{s}$  [3]). En una imagen clásica del átomo esta magnitud es comparable al tiempo que tarda el electrón en dar una vuelta alrededor del núcleo (150 as). A diferencia del funcionamiento usual de una fuente láser convencional, donde la radiación que sale de la cavidad resonante tiene una determinada longitud de onda (monocromática) y alta coherencia (coincidencia de fase), los láseres de pulsos cortos se generan sumando muchas ondas de distinta frecuencias. Para ello, se mantiene fija la relación de fase entre las ondas. Generalmente la relación entre las fases es en principio aleatoria, pero existen técnicas llamadas *mode-locking* precisamente para fijarla y generar una salida pulsada [4]. Por otra parte, para generar pulsos aún más cortos (ultracortos) se focalizan pulsos intensos ( $I \sim 10^{14} \text{W/cm}^2$ ) externos de bombeo, sobre un medio activo como gas atómico. Como resultado, los electrones emitidos se ven gobernados por el láser que, en algunos casos, los puede hacer recolisionar con el blanco. Cuando esto sucede, pueden recombinarse con el átomo emitiendo fotones con frecuencias que son múltiplos de la

original. Esto se conoce como la generación de armónicos de orden superior (HHG: High order Harmonic Generation), en la cual se emiten pulsos de luz de hasta muy alta frecuencia en intervalos de tiempo muy cortos [3, 5, 6]. Frente a esta posibilidad de obtener pulsos de luz de attosegundos, el interés de la comunidad científica se ha volcado al uso de estos pulsos para “observar” y luego controlar la dinámica ultrarrápida en procesos moleculares, nanopartículas, superficies (por ejemplo en la rotura de algunos enlaces químicos, movimiento de electrones de valencia, generación de plasmones, etc) e incluso el seguimiento del movimiento electrónico en tiempo real [7–9].

A tal corta duración del pulso (de unos pocos ciclos ópticos), se vuelve necesario conocer y controlar la forma del pulso o perfil temporal a través del campo eléctrico y su envolvente. De esta manera se introduce la fase CEP (Carrier Envelope Phase) que indica el corrimiento temporal entre el pico máximo de la envolvente y el máximo de la oscilación del campo [10]. Así, si consideramos una configuración tipo seno tenemos que en el máximo de la envolvente el campo eléctrico se anula, mientras que para la de tipo coseno, el campo es máximo. Como resultado, la dinámica electrónica resulta muy sensible a esta fase. Uno de los logros principales en materia de control fue obtener pulsos con fase CEP y frecuencia estabilizadas, y de esta manera conseguir repetitividad pulso a pulso [11].

Por otra parte, en las últimas décadas se alcanzaron intensidades del orden de  $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> y más, a través de una técnica que permite incrementar la intensidad del pulso sin destruir el material amplificador. Conocido como CPA (Chirped Pulse Amplification) [12], este método recurre a la dispersión cromática del pulso original provocando un retardo de algunas frecuencias frente a otras y estirando el pulso. Al aumentar la duración temporal disminuye el pico de potencia por debajo de los umbrales de daño de los materiales del sistema. Luego de pasar por cristales amplificadores, las componentes del pulso vuelven a ser reunidas a través del compresor (proceso inverso al estirador) obteniendo finalmente pulsos energéticos temporalmente muy cortos, lo que lleva a potencias muy altas. Gracias al desarrollo de esta técnica, Donna Strickland y Gérard Mourou obtuvieron el premio Nobel en Física en 2018 [13]. Hoy en día la tecnología CPA está tan bien desarrollada que los láseres basados en este método son relativamente compactos y accesibles hasta potencias del orden del teravatio [14].

Es en este contexto, de campos ultra intensos y ultra cortos que interactúan con átomos y moléculas, que surge una nueva área de investigación conocida como **attofísica**. En ésta se utilizan pulsos de electrones o de fotones del orden de attosegundos para investigar procesos dinámicos ultrarrápidos con una resolución temporal sin precedentes.

## 1.1. Procesos multifotónicos

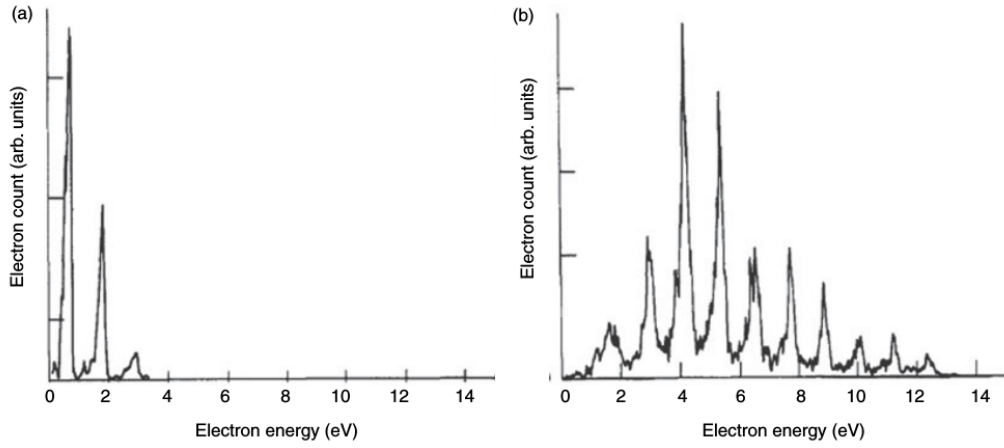
En esta sección daremos un resumen de los procesos multifotónicos más destacados y que se fueron descubriendo a medida que en los laboratorios se lograba incrementar la intensidad de la fuente láser. En cada instancia resultó necesario introducir conceptos y modelos nuevos que se adecuaban a los espectros experimentales obtenidos. Muchos de estos conceptos son relevantes para el trabajo de esta tesis.

En primer lugar vamos a considerar la **ionización multifotónica** (simple), es decir, de un solo electrón. Esta es una generalización del efecto fotoeléctrico descrito por Einstein en 1905 [15] para el caso de ionización de átomos y por absorción de, no sólo uno, sino varios fotones. La conservación de energía establece:

$$E = N\hbar\omega - I_P, \quad (1.1)$$

la cual nos dice que si  $N$  fotones de frecuencia  $\omega$  superan la barrera del potencial de ionización  $I_P$  (que es negativa y es igual a la energía del estado inicial), un electrón puede ser emitido con energía cinética  $E$ . Las primeras observaciones experimentales de este proceso, se remontan a los inicios mismos del láser. Por ejemplo, en 1963, este proceso se observó en helio y argón [16] y en 1966 en la ionización de xenón por absorción de 7 fotones [17]. Recién en 1968, el grupo de Saclay en Francia [18] estudió las tasas de ionización en función de la intensidad  $I$  de la fuente de luz y observó que la probabilidad de absorber  $N$  fotones dependía de la intensidad como  $I^N$ . Este resultado muestra una respuesta altamente no lineal con la intensidad. Además, concuerda con el orden más bajo de la teoría de perturbaciones a intensidades del orden de  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> e incluso, en algunos casos, de  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Más allá de este valor se deberán incluir otros órdenes en el desarrollo de perturbaciones. Para intensidades del orden de la unidad atómica de intensidad ( $6,44 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>), el desarrollo perturbativo deja de tener validez.

Un avance crucial se produjo con el descubrimiento de la **ionización por encima del umbral** o ATI (Above Threshold Ionization) por Agostini *et al.* en 1979 [19] para intensidades suficientemente altas ( $I > 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>). En este proceso el átomo puede absorber más fotones que el mínimo necesario para alcanzar el umbral de ionización y, por lo tanto, se pueden acceder a estados del continuo más energéticos. El espectro de energía del electrón manifiesta múltiples picos separados entre sí por  $\hbar\omega$ . La posición de estos picos está dada por la ecuación (1.1) para cada valor de  $N = n_0 + n$ , donde  $n_0 > I_P/\hbar\omega$  es el mínimo número de fotones necesarios para la ionización, mientras que  $n$  es la cantidad extra de fotones absorbidos. En la Fig. 1.1 (a) se muestra un espectro típico de ATI, medido en 1988 por Petite, Agostini y Muller [20]. Se observan 3 picos de amplitud decreciente siguiendo la teoría de perturbaciones según la cual la tasa de



**Figura 1.1:** Espectro del fotoelectrón que muestra la ionización por encima del umbral (ATI) de Xenon a una longitud de onda del láser  $\lambda = 1064$  nm. (a)  $I = 2,2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  y (b)  $I = 1,1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , obtenido por G. Petite *et al.* [20].

ionización es proporcional a  $I^{n_0+n}$ .

A medida que la intensidad aumenta, hay más fotones disponibles, por lo que aparecen picos en valores de energía más altos, ver Fig. 1.1 (b). Sin embargo los primeros son suprimidos considerablemente. Esta **supresión de picos** se entendió al introducir el concepto de *energía ponderomotriz*  $U_P$ . Ésta es la energía cinética promedio que adquiere el electrón por estar oscilando en un campo electromagnético. Su valor para un campo monocromático está dado por

$$U_P = e^2 F_0^2 / 4m\omega^2, \quad (1.2)$$

donde  $F_0$  es la amplitud del campo eléctrico,  $m$  es la masa y  $e$  la carga del electrón. Como  $U_P$  resulta ser proporcional a  $I/\omega^2$ , puede llegar a ser bastante grande dependiendo de la relación de la intensidad con la frecuencia del láser. Dado que un electrón moviéndose en un campo láser tiene una componente de energía cinética debido a la traslación  $E$  y otra al promedio del movimiento puramente oscilatorio  $U_P$ , debe introducirse una corrección en la regla de conservación de energía ec. (1.1), dando lugar a:

$$E + U_P = N\hbar\omega - I_P \quad (1.3)$$

Ahora el número mínimo de fotones necesarios para alcanzar el umbral de ionización debe ser mayor que en el caso anterior ya que el lado izquierdo de la ecuación (1.3) es mayor. Básicamente, si  $N\hbar\omega < I_P + U_P$  la ionización por absorción de  $N$  fotones está energéticamente prohibida y el umbral de ionización ocurre a partir de 4 eV en la Figura 1.1(b). Sin embargo, la ionización de átomos que se encuentran en una zona alejada del foco del láser y, por lo tanto, de campos pocos intensos, contribuyen con los picos por debajo de los 4 eV en las condiciones experimentales de [20].

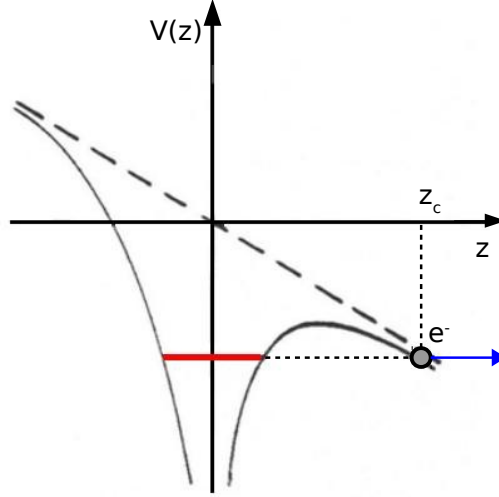
Existe otra consideración a tener en cuenta debido a la focalización del campo. Cuando un haz láser es enfocado en una cierta región pequeña del espacio, resulta ser máximo en el centro y menos intenso en los alrededores. El campo eléctrico tiene entonces una dependencia espacial  $F_0(\mathbf{r})$  y, por lo tanto, la energía ponderomotriz presenta un gradiente espacial que equivale a una *fuerza ponderomotriz*. Esta fuerza acelera a los electrones para que se alejen de la zona focal. Cuando un electrón escapa adiabáticamente de la zona del haz, toda su energía cinética oscilatoria se convierte en puramente cinética de traslación. Pero si la duración del pulso es suficientemente corta, este potencial ponderomotriz se apaga antes de que llegue a darse la transferencia de energía y el electrón no es acelerado [21, 22].

Por lo tanto es necesario distinguir dos esquemas experimentales para distintas duraciones del pulso. Para (i) *pulsos largos* (de 100 picosegundos o más): el láser no cambia durante la salida del electrón desde la zona del haz. Debido a que su escape es lento, el electrón tiene tiempo de recuperar la energía  $U_P$  adquirida por la rápida oscilación del láser en la zona de colisión. De manera que a la salida del foco, la energía cinética del electrón es  $E_{out} = E_{in} + U_P$  con  $E_{in}$  la energía cinética al momento de la ionización. Reemplazando  $E_{in}$  en la ec. (1.3), el espectro del electrón medido por el detector luce igual que si se hubiese ignorado  $U_P$  (excepto por la supresión de los picos más bajos) mostrando sus picos en valores de energía dados por  $E_{out} = N\hbar\omega - I_P$ . Para (ii) *pulsos cortos* (de pocos picosegundos o femtosegundos): el campo láser se apaga antes de que el electrón pueda ser acelerado y por lo tanto  $E_{out} = E_{in}$ . Todos los picos del espectro ATI tienen un corrimiento debido a  $U_P$ , ya que resulta  $E_{out} = N\hbar\omega - I_P - U_P$ . De hecho la medición de estos corrimientos es hoy en día una técnica para medir la intensidad del pulso.

La dependencia del espectro ATI con la duración del pulso se ha investigado experimentalmente observándose que los picos ATI se corren a energías menores a medida que disminuye la duración del pulso [23]. Para pulsos ultra cortos, con pocos ciclos de oscilación como los que se logran hoy en día, el concepto de energía ponderomotriz debe ser revisado. En estos casos, el promedio de la energía cinética no está del todo definida ya que la envolvente temporal del pulso varía de ciclo a ciclo.

Al incrementar aún más la intensidad del láser, los espectros se vuelven más difíciles de explicar a través de los modelos desarrollados. Cuando la intensidad del láser es cercana a los  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ , la interacción electrón-láser deja de ser despreciable frente a la atracción coulombiana del núcleo. Utilizando un enfoque cuasi-estático (aplicable para frecuencias del láser pequeñas), la distorsión en el potencial atómico generada por la presencia de un campo intenso produce que la barrera de potencial formada por el potencial atómico y el láser sea relativamente baja y estrecha, ver Fig. 1.2. Esta distorsión oscila con el campo láser, de manera que el potencial coulombiano es bajo cuando el campo láser alcanza su amplitud máxima. En ese momento el electrón puede

atravesar la barrera por efecto túnel (**ionización por tuneleo**) o superarla si es lo suficientemente baja (**ionización por supresión de la barrera**). Dado que el tuneleo ocurre predominantemente en los máximos del campo eléctrico, es decir, cuando baja la barrera de potencial, los paquetes de onda del fotoelectrón son emitidos en ráfagas periódicas en el tiempo. En el dominio de energía, para pulsos suficientemente largos, esta periodicidad da lugar al espectro ATI [24].



**Figura 1.2:** Modelo unidimensional que muestra la ionización por tuneleo. En línea sólida negra se muestra la energía potencial efectiva, en línea roja se indica la posición de un nivel de energía ligado (en ausencia del campo láser) y en línea punteada se indica la interacción del átomo con el campo eléctrico externo  $F(t)z$ .

Hasta el momento, vimos que tanto la ionización multifotónica como la ionización por tuneleo pueden ocurrir en presencia de campos láser intensos. Una medida cuantitativa que permite distinguir estas dos situaciones fue propuesta por Keldysh [25], a través del parámetro  $\gamma_K$ . La descripción de ionización por tuneleo supone implícitamente que el campo eléctrico oscilante es estático. De hecho, al oscilar con frecuencia  $\omega$ , el potencial lineal  $-F(t)z$  cambia su signo cada semiperíodo  $T/2 \sim 1/\omega$ . Si durante ese tiempo el electrón no pudo escapar en la dirección de  $z$  positivo, la barrera vuelve a inclinarse pero ahora con pendiente positiva, produciendo que el electrón sea empujado hacia adentro nuevamente sin poder escapar. Keldysh dedujo que la facilidad o dificultad para atravesar la barrera de potencial, se puede expresar como el cociente entre el tiempo que tarda el electrón en atravesar la barrera de potencial y el tiempo en que la barrera está baja. De esta manera, el parámetro de Keldysh se define como

$$\gamma_K = \frac{t_{tun}}{T/2}, \quad (1.4)$$

en el cual la ionización por tuneleo es el proceso principal cuando  $\gamma_K < 1$ , excepto que  $\gamma_K \ll 1$ , donde domina la ionización por supresión de la barrera de potencial,

mientras que para  $\gamma_K > 1$  la ionización multifotónica da una descripción correcta de los espectros ATI.

El tiempo de tuneleo se calcula como el cociente entre la distancia (aproximadamente  $z_c = I_P/F_0$  en la figura 1.2) y la velocidad promedio de escape del electrón dentro del túnel  $v$ . Usando el teorema de virial se tiene que  $mv^2 = I_P$  y finalmente reemplazando en la ec. (1.4) se llega a

$$\gamma_K = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}}. \quad (1.5)$$

De esta manera, a través del parámetro de Keldysh podemos distinguir los regímenes para ionización multifotónica o tuneleo, en función de los parámetros del láser y del sistema atómico bajo estudio.

En la búsqueda de un buen modelo para describir los procesos con campos aún más intensos y bajas frecuencias, es necesario ir más allá de la ionización por tuneleo y supresión de barrera y considerar que el electrón ionizado puede regresar a la zona del blanco. El **Simple man's model (SMM)** [26, 27] se basa en la idea que la ionización por campos láser intensos a bajas frecuencias sucede en varios pasos: (i) en primer lugar se produce la emisión electrónica por efecto túnel (puramente cuántico) o por la supresión de la barrera de potencial. (ii) Una vez que el electrón abandona el ion, interactúa exclusivamente con el campo láser. Esta etapa se describe muy bien utilizando la mecánica clásica. Para ello, se le asigna al electrón, que es emitido a tiempo  $t_0$ , una trayectoria clásica con condiciones iniciales de velocidad cero y posición en el núcleo (origen de coordenadas). Dado que el campo eléctrico cambia de signo, el electrón puede ser acelerado regresando hacia el núcleo. Si el electrón no regresa al núcleo ocurre una ionización simple. No obstante, (iii) si regresa a la zona del blanco, tiene lugar un tercer paso de recolisión. Si se produce una recombinación radiativa se da lugar a la generación de armónicos (HHG), mientras que si es una colisión de dispersión, ionización simple o múltiple, se generan más electrones con energías altas que producen un incremento en el espectro ATI especialmente a altas energías. Este hecho es conocido como HATI (High order Above Threshold Ionization).

El modelo semiclásico SMM ha demostrado ser muy versátil para describir una amplia gama de procesos con láseres intensos dado que la aproximación de considerar al electrón emitido gobernado únicamente por el pulso láser con una descripción puramente clásica parece ser suficiente para describir la mayoría de estos procesos con campos intensos y en particular los procesos HHG y HATI [28].

Por último, hacemos mención a los procesos asistidos por láser. A diferencia de los procesos “inducidos por láser”, como los discutidos anteriormente, los procesos “asistidos por láser” ocurren aún cuando el láser está ausente. Cuando éste está presente, los procesos son modificados por la interacción simultánea con el campo láser. En

particular consideramos la **fotoemisión asistida por láser LAPE** (Laser Assisted PhotoEmission) que consiste en la fotoionización por un pulso con frecuencia en el extremo ultravioleta (XUV) en presencia de un campo láser con frecuencia en el infrarrojo (IR) o infrarrojo cercano (NIR). En este caso, la ionización se produce únicamente por la absorción de un único fotón XUV, mientras que el campo IR actúa sobre el electrón ya emitido. Dependiendo de la duración del pulso XUV respecto del período del campo láser, se pueden distinguir dos regímenes:

1. *Streaking*: cuando la duración del pulso XUV es inferior al período de oscilación del campo láser. En este caso, la ionización por el pulso XUV es instantánea, y el electrón una vez liberado recibe un impulso extra por parte del campo IR. Dependiendo del instante en que el pulso XUV actúa, le corresponde un valor distinto de impulso. Observando esto en el espectro del electrón emitido se puede reconstruir la amplitud del campo IR. Esta es la idea principal del funcionamiento de la "streak camera" con la que es posible hacer una reconstrucción de pulsos ultracortos con pocos ciclos de oscilación [29]. Al mismo tiempo, controlando el desfase entre el pulso XUV y el campo láser IR es posible controlar el impulso que recibe el fotoelectrón y así su dinámica.
2. *Sideband*: cuando la duración del pulso XUV es mayor que el período de oscilación del campo láser. En este caso la fotoionización ocurre en un intervalo temporal largo, de manera que el campo láser puede interactuar con el paquete de onda electrónico en formación intercambiando fotones IR. Esto se observa en el espectro de energía del fotoelectrón con un pico principal debido a la absorción de un fotón XUV, acompañado de picos (o bandas laterales) equiespaciados entre sí por la energía del fotón IR, dados por la absorción y/o emisión de fotones IR. En este sentido, los picos son análogos a los del caso ATI pero desplazados por la energía del XUV.

El régimen intermedio, cuando la duración del pulso XUV es cercana a un ciclo óptico del campo IR, no ha sido aún investigado en detalle y es necesario desarrollar modelos que faciliten la interpretación física del proceso, por ejemplo en términos de trayectorias electrónicas clásicas.

Hoy en día existen variadas combinaciones de láseres con distintas frecuencias (colores) que van más allá de la configuración XUV+IR, y que dan lugar a características especiales en los espectros debido al carácter multicolor de la radiación. A modo de ejemplo citamos la técnica RABBIT que utiliza la interferencia entre dos caminos posibles de ionización  $XUV_1 + XUV_2 + IR$  para reconstruir la información del estado inicial [30, 31].



## 1.2. Desarrollo de la tesis

En esta tesis abordamos de forma teórica dos de los procesos mencionados en la sección anterior: la ionización por encima del umbral (ATI) y la fotoionización asistida por láser (LAPE). Para el caso de ATI vamos a trabajar en el régimen intermedio entre multifotónico y tuneleo. Vamos a analizar la energía cinética adquirida por un electrón en un campo láser corto oscilante (energía *quiver*) y su contribución, al balance energético, en el proceso de ionización atómica. A través de su promedio temporal analizaremos el concepto de energía ponderomotriz  $U_P$  que no se encuentra bien definida para pulsos cortos con pocos ciclos ópticos y con envolvente altamente variable en el tiempo. Luego investigaremos cómo la dependencia temporal de la envolvente se manifiesta en el valor de  $U_P$  y si tiene algún efecto sobre la dinámica del electrón. Por otro lado, para el caso de LAPE, vamos a desarrollar un modelo semiclásico, semejante al conocido en la literatura para el caso de ATI, en el régimen intermedio entre streaking y sideband. Al asignarle una trayectoria clásica al fotoelectrón buscamos comprender cómo se describe el espectro de emisión en términos de estas trayectorias.

En el **capítulo 2** presentamos las herramientas teóricas disponibles actualmente en la bibliografía para la investigación de los procesos de ionización atómica por campos intensos y cortos. A través de una descripción clásica del campo láser y de la dinámica del electrón en presencia del mismo, obtenemos una expresión para la matriz de transición en la teoría cuántica de interacción láser-átomo, la cual se utiliza para el cálculo de las tasas de emisión electrónica en los capítulos siguientes.

En el **capítulo 3** investigamos el concepto de  $U_P$  para procesos ATI inducidos por pulsos cortos, con intensidades que varían rápidamente en el tiempo. Analizamos cómo el efecto de la envolvente del pulso contribuye al espectro de energía, con la formación de picos ATI y de subestructuras asociadas a ellos. Para ello, consideramos campos cortos con envolventes simples, que involucran escalones múltiples, de distinta amplitud y retardo temporal. Con el uso del modelo SMM, a través de trayectorias clásicas, relacionamos las energías cinéticas del fotoelectrón con los tiempos de emisión. Por último, se corroboran algunos resultados con los correspondientes a la aproximación de Coulomb-Volkov (CVA) y la solución *ab initio* de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE).

En el **capítulo 4** comenzamos con la descripción del proceso LAPE. Desarrollamos el modelo semiclásico SCM con el que explicamos el proceso de ionización en términos de trayectorias del fotoelectrón. Reconstruimos el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo como el producto de dos patrones de interferencia, los cuales están asociados a las trayectorias que se originan en un mismo ciclo de oscilación (intraciclo) y a las que se originan en distintos ciclos (interciclo), respectivamente. Contrastamos los cálculos obtenidos con los cuánticos dentro de la aproximación de campo intenso (SFA) y la

solución *ab initio* de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE).

En el **capítulo 5** particularizamos el modelo SCM para direcciones de emisión electrónica particulares. Primero consideramos la emisión electrónica en la misma dirección de polarización que los campos IR y XUV. Luego, estudiamos el caso de emisión perpendicular en el que se introduce un nuevo patrón de interferencia que resulta de trayectorias originadas en un semiciclo y en cada semiciclo óptico del láser (intra- e inter-medio-ciclo). Esta nueva contribución interfiere destructivamente anulando las bandas laterales impares del espectro electrónico. Todos los resultados obtenidos dentro del SCM para cada uno de los casos se comparan con aquellos cuánticos obtenidos dentro de la SFA y la TDSE.

Dado que las interferencias intra- e inter-medio-ciclo están relacionadas con las simetrías del elemento dipolar y los vectores de polarización de los campos, la selectividad a la hora de destruir algunas bandas laterales puede variar en el caso de ionización desde otros estados iniciales. Por ello, en el **capítulo 6** estudiamos la ionización desde la capa 3 de argón (en una descripción hidrogenoide) y desde el estado fundamental del ión molecular  $H_2^+$ , para una configuración paralela y ortogonal de los vectores de polarización de los láseres. Con esto analizamos la aplicabilidad del modelo desarrollado en los capítulos anteriores para casos más generales y otras configuraciones geométricas de los láseres.

Finalmente, en el **capítulo 7** se presentan las conclusiones generales de esta tesis y describimos posibles líneas de investigación para el futuro.

A lo largo de toda la tesis se utilizan unidades atómicas descriptas en el Apéndice [A](#), excepto cuando se indique lo contrario.

# Capítulo 2

## Teoría de la interacción entre átomos y láseres

En este capítulo presentamos la teoría que explica las interacciones entre el campo láser y el átomo siguiendo el desarrollo presentado por Joachain *et al.* [32]. Debido a que los campos láser son intensos, es decir, involucran un gran número de fotones, es conveniente utilizar una descripción semiclásica que trata de forma clásica el campo láser y en forma cuántica al átomo. También mostramos las soluciones, tanto clásicas como cuánticas, del movimiento de un electrón “libre” en un campo láser. Luego, presentamos la amplitud de transición dentro de la teoría de onda distorsionada con la que se calcula la probabilidad de emisión electrónica. Introducimos las aproximaciones de campo fuerte (SFA) y Coulomb-Volkov (CVA).

### 2.1. Descripción clásica de un campo láser

El campo electromagnético clásico, descrito en el vacío por sus campos eléctrico  $\mathbf{F}(\mathbf{r}, t)$  y magnético  $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ , satisface las ecuaciones de Maxwell sin fuentes

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \quad \nabla \cdot \mathbf{F} = 0, \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t}, \quad \nabla \times \mathbf{F} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.2)$$

donde  $c$  es la velocidad de la luz en el vacío. Los campos eléctrico y magnético pueden generarse a partir de potenciales escalar  $\phi(\mathbf{r}, t)$  y vectorial  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ , a través de las siguientes relaciones

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad \mathbf{F} = -\nabla\phi - \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}. \quad (2.3)$$

De las ecuaciones (2.2) y (2.3), se sigue que el potencial vector  $\mathbf{A}$  satisface la ecuación de onda homogénea (como también la satisfacen  $\phi$ ,  $\mathbf{F}$  y  $\mathbf{B}$ )

$$\nabla^2 \mathbf{A} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} = 0. \quad (2.4)$$

Los potenciales  $\phi$  y  $\mathbf{A}$  no están unívocamente definidos por estas ecuaciones, dado que los campos  $\mathbf{F}$  y  $\mathbf{B}$  son invariantes bajo las *transformaciones de gauge* (clásicas)

$$\begin{cases} \mathbf{A} \rightarrow \mathbf{A}' = \mathbf{A} + \nabla f, \\ \phi \rightarrow \phi' = \phi - \frac{\partial f}{\partial t} \end{cases} \quad (2.5)$$

donde  $f$  es una función arbitraria real y diferenciable de la coordenada  $\mathbf{r}$  y el tiempo  $t$ . La libertad en la elección de la función  $f$  implica la *invariancia de gauge* (2.5) y permite que se pueda elegir un conjunto de potenciales  $(\phi, \mathbf{A})$  que cumplan la *condición de Lorentz*, dada por

$$\nabla \cdot \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial \phi}{\partial t} = 0. \quad (2.6)$$

Los potenciales que satisfacen esta condición pertenecen al *gauge de Lorentz*. Otro gauge que generalmente se utiliza cuando no existen fuentes presentes es el *gauge de Coulomb*, el cual está definido por la condición

$$\nabla \cdot \mathbf{A} = 0 \quad (2.7)$$

donde  $\phi = 0$ , y los campos eléctricos y magnéticos quedan determinados por las ecuaciones

$$\mathbf{F} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}, \quad (2.8)$$

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}. \quad (2.9)$$

### 2.1.1. Soluciones de onda plana de las ecuaciones de Maxwell

Una solución posible para la ecuación (2.6) es una onda plana monocromática con frecuencia angular  $\omega$  y longitud de onda  $\lambda = 2\pi c/\omega$ , dada por

$$A(\mathbf{r}, t) = A_0 \sin(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t - \phi_0) \hat{\mathbf{e}} \quad (2.10)$$

donde  $\mathbf{k}$  es el *vector propagación* del campo láser con módulo  $k = \omega/c$ ,  $\phi_0$  es una fase real constante,  $A_0$  es la amplitud del potencial vector que tomamos positiva y  $\hat{\mathbf{e}}$  es un vector unitario que recibe el nombre de vector de polarización. En el gauge de Coulomb ec. (2.7) tenemos que

$$\mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{e}} = 0 \quad (2.11)$$

lo que significa que la dirección de propagación  $\mathbf{k}$  es perpendicular a la polarización  $\hat{\mathbf{e}}$ . Una onda que posee estas características se dice que es *transversal*. De la ec. (2.8) se deriva el campo eléctrico, dado por

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = F_0 \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t - \phi_0) \hat{\mathbf{e}}, \quad (2.12)$$

con  $F_0 = \omega A_0$  la amplitud del campo. Ambos campos, el potencial vector  $\mathbf{A}$  y el campo eléctrico  $\mathbf{F}$ , tienen dirección de polarización  $\hat{\mathbf{e}}$ . Análogamente, para el campo magnético se obtiene que:

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \frac{F_0}{\omega} (\mathbf{k} \times \hat{\mathbf{e}}) \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t - \phi_0) \quad (2.13)$$

De las ecuaciones (2.11) a (2.13), se sigue que los vectores  $\mathbf{F}$ ,  $\mathbf{B}$  y  $\mathbf{k}$  son ortogonales entre sí y, además, se cumple que  $|\mathbf{B}| = |\mathbf{F}|/c$ .

Una onda electromagnética descrita por las ecuaciones (2.12) y (2.13), en la cual el vector de polarización  $\hat{\mathbf{e}}$  está fijo (es decir, es independiente del tiempo), decimos que corresponde a una onda *linealmente polarizada*. Durante el desarrollo de la tesis utilizaremos este tipo de ondas.

Por otra parte, la densidad de energía de un campo electromagnético monocromático está dada por:

$$\frac{1}{2}(\epsilon_0 |\mathbf{F}|^2 + \mu_0^{-1} |\mathbf{B}|^2) = \epsilon_0 F_0^2 [\cos^2(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t - \phi_0)]$$

donde  $\epsilon_0$  y  $\mu_0$  son la permitividad y la permeabilidad del espacio vacío, respectivamente, y  $(\epsilon_0 \mu_0)^{-1} = c^2$ . El promedio de la densidad de energía sobre un período temporal  $T = 2\pi/\omega$  es

$$\rho(\omega) = \frac{1}{2} \epsilon_0 F_0^2 = \frac{1}{2} \epsilon_0 \omega^2 A_0^2. \quad (2.14)$$

Es interesante relacionar este resultado con la densidad de fotones, teniendo en cuenta que cada fotón lleva un quantum de energía  $\hbar\omega$ . Si  $N(\omega)$  denota el número de fotones de frecuencia angular  $\omega$  dentro de un volumen  $V$ , la densidad de energía está dada por  $\rho(\omega) = \hbar\omega N(\omega)/V$ . Reemplazando esto último en la ec. (2.14) se tiene que:

$$F_0^2 = \frac{2\hbar\omega N(\omega)}{\epsilon_0 V}. \quad (2.15)$$

El vector de Poynting definido por  $\mathbf{S} = (\mathbf{F} \times \mathbf{B})/\mu_0$  tiene la misma dirección que el vector de propagación  $\mathbf{k}$ . Su magnitud es la irradiancia  $I(\omega)$  asociada a una onda plana monocromática [ec. (2.12)] de frecuencia  $\omega$  y se calcula como la velocidad del flujo de energía a través de un área unitaria perpendicular a la dirección de propagación y

promediada sobre un período  $T$ . Es decir,

$$I(\omega) = \frac{1}{2}\epsilon_0 c F_0^2 = \frac{1}{2}\epsilon_0 c \omega^2 A_0^2. \quad (2.16)$$

De las ecuaciones (2.14), (2.15) y (2.16) tenemos que

$$I(\omega) = \rho(\omega)c = \frac{\hbar\omega N(\omega)c}{\epsilon_0 V}, \quad (2.17)$$

de la cual se desprende que la intensidad es proporcional al número de fotones. Finalmente, el flujo de fotones del campo está dado por  $\Phi(\omega) = I(\omega)/\hbar\omega$ .

Como ejemplo, consideremos un campo láser linealmente polarizado generado por un láser Nd:YAG (Neodymium-doped Yttrium Aluminum Garnet: Nd : Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>) con energía del fotón  $\hbar\omega = 1,7$  eV e intensidad  $I = 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, el número de fotones en un volumen de coherencia  $V = \lambda^3$  (con  $\lambda = 2\pi c/\omega = 1064$  nm) calculado a través de la ec. (2.17), es muy grande,

$$N = \frac{IV}{\hbar\omega c} \sim 2 \times 10^8, \quad (2.18)$$

por lo tanto la descripción clásica del campo láser queda justificada.

### 2.1.2. Pulsos láser cortos

El campo electromagnético puede considerarse monocromático cuando el pulso láser es “largo”, es decir, involucra decenas de ciclos ópticos o más. Sin embargo, éste no es el caso de los pulsos láser cortos o ultracortos, que duran unos pocos ciclos ópticos o incluso menos. Para describir este último caso, consideraremos que el pulso es una superposición de ondas planas monocromáticas con amplitudes, frecuencias y fases apropiadas. También trabajamos con pulsos espacialmente homogéneos en el plano perpendicular al vector de propagación del láser  $\mathbf{k}$ .

Consideramos el caso simple en que cada componente de onda plana tiene la misma dirección de propagación  $\hat{\mathbf{k}}$  y está linealmente polarizado en  $\hat{\mathbf{e}}$ . El potencial vector, en el gauge de Coulomb, puede describirse como

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{e}} \int_0^\infty A_0(\omega') \sin[\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r} - \omega' t - \phi_0(\omega')] d\omega' \quad (2.19)$$

donde  $\phi_0(\omega')$  es la fase asociada con la frecuencia angular  $\omega'$  y  $\mathbf{k}' = (\omega'/c)\hat{\mathbf{k}}$ . Dado que el pulso láser está localizado en el tiempo, la amplitud  $A_0(\omega')$  tiene un pico sobre la frecuencia angular portadora  $\omega$  del pulso, mientras que su ancho es inversamente proporcional a la duración del mismo. Si el campo láser es monocromático, entonces  $A_0(\omega')$  se reduce a  $A_0\delta(\omega' - \omega)$ , donde  $\delta(x)$  denota la función delta de Dirac. Ambos

$\phi(\omega')$  y  $A_0(\omega')$  son, en general, funciones suaves. Sin embargo, para pulsos ultracortos  $A_0(\omega')$  puede variar de forma complicada y extenderse sobre un amplio rango de frecuencias. Utilizando el desarrollo en ondas planas dado para el potencial vector en la ec. (2.19), la componente de campo eléctrico del pulso láser resulta

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{e}} \int_0^\infty f_0(\omega') \cos[\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r} - \omega' t - \phi_0(\omega')] d\omega' \quad (2.20)$$

donde la cantidad  $f_0(\omega') = \omega' A_0(\omega')$  tiene las dimensiones de amplitud del campo eléctrico dividido la unidad de frecuencia angular.

Teniendo en cuenta que: i) el flujo total de energía pasando a través de un área unitaria perpendicular al vector de propagación  $\mathbf{k}$  debe ser finito y que ii) la cavidad del oscilador láser es finita (por lo tanto frecuencias muy pequeñas no contribuyen), Joachain *et al.* [32] deducen dos condiciones que debe satisfacer el pulso láser:

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \int_{-t}^t \mathbf{F}(\mathbf{r}, t') dt' = 0, \quad (2.21)$$

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \int_{-t}^t \mathbf{A}(\mathbf{r}, t') dt' = 0. \quad (2.22)$$

Estas condiciones tienen implicaciones importantes en la dinámica de electrones libres en campos láser, como se verá más adelante.

Por otra parte, es conveniente utilizar el hecho de que cualquier función que dependa de la posición y del tiempo a través de la cantidad

$$\eta = \omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}, \quad (2.23)$$

es también solución lineal de la ecuación (2.6). Entonces, un pulso láser linealmente polarizado puede describirse con un potencial vector de la forma

$$\mathbf{A}(\eta) = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = -\hat{\mathbf{e}} \frac{F_0}{\omega} \int_{-\infty}^{\eta} F(\eta') \cos(\eta' + \phi_0) d\eta' \quad (2.24)$$

donde  $F$  es una función no negativa que describe el perfil temporal (forma o envolvente) del pulso. De la ecuación (2.8), queda definido el campo eléctrico como

$$\mathbf{F}(\eta) = \mathbf{F}(\mathbf{r}, t) = F_0(\eta) \cos(\eta + \phi_0) \hat{\mathbf{e}}. \quad (2.25)$$

De esta manera, el pulso se escribe simplemente como una onda portadora, de frecuencia angular  $\omega$ , modulada por la función envolvente  $F_0(\eta) = F_0 F(\eta)$  donde  $0 \leq F(\eta) \leq 1$  y  $F_0$  corresponde al pico de máxima amplitud del campo eléctrico. Luego el pico de

intensidad de un pulso láser resulta

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c F_0^2. \quad (2.26)$$

Dado que la amplitud de oscilación del campo eléctrico cambia a lo largo del pulso a través de la envolvente, esta cantidad no es, en general, igual al promedio temporal sobre un ciclo óptico de la magnitud del vector de Poynting. En la práctica puede suceder que la diferencia sea insignificante si el pulso abarca varios ciclos ópticos. No obstante, si el pulso es corto (de unos pocos ciclos) y con una función envolvente que varía rápidamente con el tiempo, la intensidad promedio en cada ciclo no es la misma.

### 2.1.3. Aproximación dipolar

Cuando la longitud de onda del campo eléctrico del láser  $\lambda$ , que se relaciona con el número de onda a través de  $k = 2\pi/\lambda$ , es larga en comparación con el tamaño del sistema atómico bajo estudio, puede aplicarse la *aproximación dipolar*. La misma consiste en despreciar la variación espacial del campo a través del átomo. En esta aproximación, para un átomo cuyo núcleo está localizado en la posición  $\mathbf{r}_0$ , el potencial vector  $\mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t) = \mathbf{A}(t)$  es espacialmente homogéneo, es decir, depende solamente del tiempo, así la condición del gauge de Coulomb (2.7) se satisface automáticamente. Por otra parte, de la ec. (2.8) se tiene que el campo eléctrico satisface

$$\mathbf{F}(t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(t), \quad (2.27)$$

por lo que también depende sólo del tiempo, mientras que el campo magnético se anula, ya que  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}(t) = \mathbf{0}$ . Estrictamente hablando, el potencial vector  $\mathbf{A}(t)$  propuesto en la ec. (2.27) no es una solución de la ecuación de onda (2.4), y se utiliza solamente como una aproximación cuando los campos no son tan intensos (de manera que  $|\mathbf{B}| = |\mathbf{F}|/c \ll 1$ ) y tienen longitudes de onda  $\lambda \gg a_0$  (con  $a_0$  el radio de Bohr, ver Apéndice A). Bajo estas condiciones ( $F_0 \ll 137$  y  $\omega \ll 137/2\pi \sim 22$  en unidades atómicas) la aproximación dipolar queda bien justificada.

Volviendo a la descripción de un pulso, en la aproximación dipolar y considerando al átomo en el origen de coordenadas, *i.e.*,  $r_0 = 0$  sin pérdida de generalidad, la ec. (2.25) se puede reescribir como

$$\mathbf{F}(t) = F_0(t) \cos(\omega t + \phi_0) \hat{\epsilon} \quad (2.28)$$

donde  $F_0(t)$  es una envolvente suave que depende del tiempo, cuyo máximo valor está dado por la amplitud del campo  $F_0$ ,  $\omega$  la frecuencia portadora del pulso,  $\phi_0$  la fase portadora y  $\hat{\epsilon}$  el vector de polarización lineal.



### 2.1.4. Movimiento clásico de un electrón en un campo electromagnético

Para comprender la dinámica del electrón libre en un campo electromagnético resulta útil describir la evolución de su trayectoria clásica. Dentro de la aproximación dipolar, la dinámica del electrón se describe a través de la ecuación  $m\dot{\mathbf{v}} = -e\mathbf{F}(t)$ . La velocidad y la posición se integran fácilmente resultando:

$$\mathbf{v}(t) = \frac{e}{m}[\mathbf{A}(t) - \mathbf{A}(t_0)] + \mathbf{v}_0 = \frac{e}{m}\mathbf{A}(t) + \mathbf{v}_d, \quad (2.29)$$

$$\mathbf{r}(t) = \boldsymbol{\alpha}(t) + \mathbf{v}_d(t - t_0) + \mathbf{r}_0 \quad (2.30)$$

donde  $\mathbf{v}_0$  y  $\mathbf{r}_0$  corresponden a las condiciones iniciales a tiempo  $t_0$  y

$$\boldsymbol{\alpha}(t) = \frac{e}{m} \int_{t_0}^t \mathbf{A}(t') dt'. \quad (2.31)$$

De estas ecuaciones se puede interpretar la trayectoria del electrón como la superposición de dos movimientos: uno rectilíneo uniforme con velocidad constante  $\mathbf{v}_d$  de deriva (o *drift*) y otro puramente oscilatorio en fase con el potencial vector  $\mathbf{A}(t)$ , también conocido como *quiver*. El vector de desplazamiento  $\boldsymbol{\alpha}$  indica cuánto se desplaza el electrón debido al movimiento *quiver* respecto de la trayectoria rectilínea de deriva. Para pulsos que se encienden y apagan en tiempos finitos, la ec (2.22) determina que el desplazamiento neto termina siendo nulo. Si además el campo láser tiene un período de oscilación  $T = 2\pi/\omega$  y una envolvente que varía de forma suave en el tiempo, el potencial vector promediado en un ciclo  $T$  también resulta despreciable:  $\int_t^{t+T} \mathbf{A}(t') dt' \simeq 0$ . Por lo tanto, la energía cinética del electrón promediada en un ciclo es:

$$\langle T_{\text{cinética}} \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} \frac{m\mathbf{v}^2(t')}{2} dt' = \frac{m\mathbf{v}_d^2}{2} + U_P \quad (2.32)$$

donde se distinguen las dos contribuciones, una proveniente del movimiento de deriva y otra debida al *quiver*, denominada energía *ponderomotriz*:

$$U_P = \frac{1}{T} \frac{e^2}{m} \int_t^{t+T} \frac{\mathbf{A}^2(t')}{2} dt', \quad (2.33)$$

para tiempos suficientemente largos, el láser se apaga y la energía de oscilación (ponderomotriz) se desvanece quedando solo la energía cinética correspondiente a la velocidad de deriva.

Consideremos, por ejemplo, un campo sinusoidal dado por la ec. (2.28) con  $\phi = -\pi/2$ , envolvente constante  $F_0$  y linealmente polarizado en  $\mathbf{e}_z$ , cuyo potencial vector del láser es  $\mathbf{A}(t) = (F_0/\omega) \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$ . De la ec. (2.33) se tiene que  $U_P = (e^2 F_0^2 / 4m\omega^2)$ ,

tal como se introdujo en el capítulo 1 ec. (1.2). Si además consideramos que a tiempo  $t_0 = 0$  se imponen condiciones iniciales nulas, las ecuaciones (2.29) y (2.30) resultan:

$$\dot{z}(t) = \frac{e}{m} \frac{F_0}{\omega} \cos(\omega t) + v_d, \quad (2.34)$$

$$z(t) = |\alpha| \sin(\omega t) + v_d t, \quad (2.35)$$

con  $v_d = -eF_0/m\omega$  y  $|\alpha| = eF_0/m\omega^2$  la amplitud de la excursión del electrón. Por otra parte, la energía cinética promedio del electrón resulta en

$$\langle T_{\text{cinética}} \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} \frac{m\dot{z}^2(t')}{2} dt' = \underbrace{\frac{e^2 F_0^2}{2m\omega^2}}_{2U_P} + U_P, \quad (2.36)$$

donde  $2U_P$  se conoce como energía cinética de deriva. De acuerdo a lo discutido en la sección 1.1, la ec. (2.36) corresponde a la energía cinética que adquiere el electrón cuando la duración del pulso láser es larga. Mientras que para duraciones suficientemente cortas del láser, tenemos que la contribución de  $U_P$  en la ec. (2.36) se vuelve despreciable y su energía cinética sólo se debe a la energía cinética de deriva  $2U_P$ .

## 2.2. Teoría cuántica de la interacción átomo-láser

Ahora pasamos a estudiar el sistema atómico desde el punto de vista cuántico, interactuando con el campo electromagnético clásico descrito en la sección anterior.

En primer lugar consideramos un electrón sólo con carga  $q = -e$  en presencia del campo láser. El hamiltoniano no relativista para el electrón en un campo electromagnético descrito, en un gauge arbitrario, por un potencial escalar  $\phi(\mathbf{r}, t)$  y el potencial vector  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  es

$$\begin{aligned} H(t) &= \frac{1}{2m} (\mathbf{p} + e\mathbf{A})^2 - e\phi \\ &= -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - i\hbar \frac{e}{2m} (\mathbf{A} \cdot \nabla + \nabla \cdot \mathbf{A}) + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2 - e\phi \end{aligned} \quad (2.37)$$

donde se despreciaron los términos pequeños dependientes del espín y  $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$  es el operador de momento del electrón. La ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE) en el gauge de Coulomb ec. (2.7) y en un espacio vacío  $\phi = 0$ , es la siguiente

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - i\hbar \frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \nabla + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2 \right] \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.38)$$

Al considerar ahora a un sistema atómico (hidrogenoide) y no relativista con un electrón se debe agregar el potencial electrostático de Coulomb entre el electrón y el

núcleo  $V(r) = -Ze^2/(4\pi\epsilon_0 r)$ . Aquí consideramos el núcleo fijo en el origen de coordenadas y despreciamos la interacción entre el núcleo y el láser. Entonces la TDSE se lee:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r} - i\hbar \frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \nabla + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2 \right] \Psi(\mathbf{r}, t), \quad (2.39)$$

la cual se puede reescribir de la forma

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = [H_0 + H_{int}] \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.40)$$

donde el hamiltoniano independiente del tiempo para un átomo hidrogenoide es:

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r} \quad (2.41)$$

y el hamiltoniano de interacción del átomo hidrogenoide con el campo de radiación resulta:

$$H_{int} = -i\hbar \frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \nabla + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2. \quad (2.42)$$

Al considerar un átomo de  $N$ -electrones, en el Hamiltoniano total se debe sumar, por cada electrón, las contribuciones a la energía cinética e interacción con el campo, más el potencial coulombiano por pares de electrones. Sin embargo, es común resolver el problema en el contexto de la **aproximación de electrón activo simple** (Single Active Electron-SAE). De esta manera, la ionización dentro de la SAE se describe como un proceso de un sólo electrón, en el cual todos los electrones restantes del sistema actúan como espectadores congelados. Esto significa que el electrón activo siente un potencial debido a todos los electrones restantes. con potencial de ionización  $I_P$  y sólo ese electrón es el que puede cambiar de estado, mientras que el resto de los electrones (pasivos) permanecen en el estado original.

### 2.2.1. Invariancia de gauge de la ecuación de Schrödinger

Regresemos a la ecuación TDSE con hamiltoniando de la ec. (2.37), la cual corresponde a un electrón en un campo electromagnético descrito por los potenciales escalar  $\phi(\mathbf{r}, t)$  y vector  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ . Una importante propiedad de esa ecuación es que su forma no cambia bajo las *transformaciones de gauge* de la mecánica cuántica:

$$\begin{aligned} \mathbf{A} &\rightarrow \mathbf{A}' = \mathbf{A} + \nabla f \\ \phi &\rightarrow \phi' = \phi - \frac{\partial f}{\partial t} \\ \Psi &\rightarrow \Psi' = \exp(-ief/\hbar) \Psi \end{aligned} \quad (2.43)$$

donde  $f$  es una función arbitraria, real y diferenciable de  $\mathbf{r}$  y  $t$ . De hecho, la función de onda  $\Psi'(\mathbf{r}, t)$  satisface la ecuación

$$i\hbar\Psi'(\mathbf{r}, t) = \left[ -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 - i\hbar\frac{e}{2m}(\mathbf{A}' \cdot \nabla + \nabla \cdot \mathbf{A}') + \frac{e^2}{2m}\mathbf{A}'^2 - e\phi' \right] \Psi'(\mathbf{r}, t), \quad (2.44)$$

que tiene la misma forma funcional que la TDSE original, pero con los potenciales vector y escalar transformados. Una transformación de gauge es un caso particular de una transformación unitaria, donde las magnitudes cuantificables (tales como los valores de expectación o probabilidades de transición) calculadas en diferentes gauges deberían ser, en principio, las mismas. En la práctica, se utilizan aproximaciones que rompen la invariancia de gauge de la TDSE.

La propiedad de la invariancia de gauge nos permite simplificar la TDSE por una elección apropiada de gauge. De esta manera, resulta a veces conveniente trabajar en el gauge de Coulomb, puesto que  $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ , con  $\phi = 0$ . Mostraremos, en la *aproximación dipolar*, que el término de interacción de la ec. (2.39), puede simplificarse utilizando las transformaciones de gauge.

Primero notamos que el término  $\mathbf{A}^2$  de la ec. (2.39) puede eliminarse, extrayendo de la función de onda el factor de fase dependiente de tiempo, de acuerdo a

$$\Psi^v(\mathbf{r}, t) = \exp \left[ \frac{i}{\hbar} \frac{e^2}{2m} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{A}^2(t') \right] \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.45)$$

Esto es equivalente a elegir que la función  $f$  de la transformación de gauge (2.43) sea

$$f = -\frac{e}{2m} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{A}^2(t'). \quad (2.46)$$

Vemos de las ecuaciones (2.43) y (2.46) que

$$\begin{cases} \mathbf{A}' = \mathbf{A}, \\ \phi' = \frac{e}{2m} \mathbf{A}^2. \end{cases}$$

Luego, reemplazando la ecuación (2.45) en la ec. (2.44) y utilizando el gauge de Coulomb ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ) y  $\phi = 0$ , tenemos que la TDSE para la nueva función de onda  $\Psi'(\mathbf{r}, t) = \Psi^v(\mathbf{r}, t)$  es

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi^v(\mathbf{r}, t) = \left[ H_0 - i\hbar\frac{e}{m}\mathbf{A}(t) \cdot \nabla \right] \Psi^v(\mathbf{r}, t), \quad (2.47)$$

la cual se dice que está en el *gauge de velocidad*, dado que el hamiltoniano de interacción es

$$H_{int}^v(t) = -i\hbar\frac{e}{m}\mathbf{A}(t) \cdot \nabla, \quad (2.48)$$

que acopla el potencial vector  $\mathbf{A}(t)$  con el operador momento  $-i\hbar\nabla/m$ .

Otra transformación de gauge puede realizarse partiendo de la ec. (2.39) y tomando  $f = -\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}$ . Luego, de la ec. (2.43) se tiene que

$$\begin{cases} \mathbf{A}' = 0 \\ \phi' = (\partial\mathbf{A}/\partial t) \cdot \mathbf{r} = -\mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r} \end{cases}$$

y la nueva función de onda está dada por

$$\Psi^l(\mathbf{r}, t) = \exp \left[ \frac{ie}{\hbar} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} \right] \Psi(\mathbf{r}, t). \quad (2.49)$$

Reemplazando la ecuación (2.49) en la ec. (2.44) y utilizando el gauge de Coulomb ( $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ ) y  $\phi = 0$ , tenemos que la TDSE para la nueva función de onda  $\Psi^l(\mathbf{r}, t) = \Psi^l(\mathbf{r}, t)$  es

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi^l(\mathbf{r}, t) = [H_0 + e\mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r}] \Psi^l(\mathbf{r}, t), \quad (2.50)$$

la cual se dice que está en el *gauge de longitud* debido a que el hamiltoniano de interacción es

$$H_{int}^l(t) = e\mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r}, \quad (2.51)$$

que acopla el campo eléctrico  $\mathbf{F}(t)$  con el operador de posición  $\mathbf{r}$ .

### 2.2.2. Funciones de onda de Gordon-Volkov

La ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo para un electrón libre en presencia de un campo láser bajo la aproximación dipolar tiene solución analítica conocida. Estas funciones de onda son conocidas con el nombre "Gordon-Volkov" y corresponden a la contraparte no relativista de las expresiones derivadas originalmente por Gordon [33] y Volkov [34] para partículas cargadas sin espín y espín 1/2, respectivamente.

En el presente caso, el movimiento del electrón está gobernado por la TDSE, dada por

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \chi(\mathbf{r}, t) &= H(t) \chi(\mathbf{r}, t) \\ &= \frac{1}{2m} [\mathbf{p} + e\mathbf{A}(t)]^2 \chi(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (2.52)$$

donde  $H(t)$  denota el hamiltoniano del electrón libre en el campo láser. Realizando la siguiente transformación de gauge

$$\chi^v(\mathbf{r}, t) = \exp \left[ \frac{ie^2}{\hbar 2m} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{A}^2(t') \right] \chi(\mathbf{r}, t) \quad (2.53)$$

y reemplazando la ec. (2.53) en la ec. (2.52), obtenemos la TDSE en el gauge de

velocidad

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \chi^v(\mathbf{r}, t) &= H^v(t) \chi^v(\mathbf{r}, t), \\ &= \left[ \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + \frac{e}{m} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{p} \right] \chi^v(\mathbf{r}, t). \end{aligned} \quad (2.54)$$

Como el hamiltoniano  $H^v(t)$  conmuta con el operador  $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$  y dado que  $\exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  es una autofunción de  $\mathbf{p}$  correspondiente al autovalor  $\hbar\mathbf{k}$ , podemos buscar soluciones de la ec. (2.54) de la forma

$$\chi_{\mathbf{k}}^v(\mathbf{r}, t) = (2\pi)^{-3/2} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}) f_{\mathbf{k}}(t). \quad (2.55)$$

De esta manera, sustituyendo la ec. (2.55) en la ec. (2.54), obtenemos para la función  $f_{\mathbf{k}}(t)$  una ecuación diferencial de primer orden

$$i\hbar \frac{d}{dt} f_{\mathbf{k}}(t) = \left[ \frac{\hbar^2 k^2}{2m} + \frac{e\hbar}{m} \mathbf{k} \cdot \mathbf{A}(t) \right] f_{\mathbf{k}}(t), \quad (2.56)$$

la cual se resuelve fácilmente proponiendo

$$f_{\mathbf{k}}(t) = C \exp[-iE_k t/\hbar - i\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\alpha}(t)] \quad (2.57)$$

donde  $\boldsymbol{\alpha}(t)$  es el vector de desplazamiento introducido en la ec. (2.31),  $C$  es una constante y  $E_k = \hbar^2 k^2/(2m)$  es la energía cinética del electrón y autovalor del operador  $\hbar^2 \nabla^2/2m$ . Sustituyendo la ec. (2.57) en la ec. (2.55), encontramos que la solución de la ec. (2.54) es la función de onda de Gordon-Volkov no relativista en el gauge de velocidad:

$$\chi_{\mathbf{k}}^v = (2\pi)^{-3/2} \exp\{i\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r} - \boldsymbol{\alpha}(t)] - iE_k t/\hbar\} \quad (2.58)$$

donde elegimos  $C = 1$  para que la función de onda (2.58) esté normalizada de acuerdo a:

$$\langle \chi_{\mathbf{k}'}^v | \chi_{\mathbf{k}}^v \rangle = \delta(\hat{\mathbf{k}} - \hat{\mathbf{k}}'), \quad (2.59)$$

con  $\hat{\mathbf{k}}$  y  $\hat{\mathbf{k}}'$  vectores unitarios en las direcciones de  $\mathbf{k}$  y  $\mathbf{k}'$ .

Finalmente, la solución Gordon-Volkov de la TDSE sin transformar, se obtiene a partir de ec. (2.53):

$$\chi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}, t) = (2\pi)^{-3/2} \exp \left\{ i\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r} - \boldsymbol{\alpha}(t)] - iE_k t/\hbar - \frac{i}{\hbar} \frac{e^2}{2m} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{A}^2(t') \right\}. \quad (2.60)$$

Esta función de onda Gordon-Volkov (2.58) describe la superposición del movimiento *quiver* del electrón en el campo láser y del movimiento de deriva con momento constante  $\hbar\mathbf{k}$  y energía  $E_k$ . Esto está en concordancia con la descripción clásica del electrón en

dicho campo (ver sección 2.1.4).

Procediendo de la misma manera, se puede encontrar la función de Gordon-Volkov en el gauge de longitud a partir de la ecuación (2.49), la cual nos queda

$$\begin{aligned}\chi_{\mathbf{k}}^l(\mathbf{r}, t) &= (2\pi)^{-3/2} \exp \left\{ \frac{ie}{\hbar} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r} + i\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r} - \boldsymbol{\alpha}(t)] - iE_k t / \hbar - \frac{i}{\hbar} \frac{e^2}{2m} \int_{-\infty}^t dt' \mathbf{A}^2(t') \right\} \\ &= (2\pi)^{-3/2} \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} [\hbar\mathbf{k} + e\mathbf{A}(t)] \cdot \mathbf{r} - \frac{i}{2m\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [\hbar\mathbf{k} + e\mathbf{A}(t')]^2 \right\}\end{aligned}\quad (2.61)$$

donde  $\chi_{\mathbf{k}}^l(\mathbf{r}, t)$  es solución de la TDSE-gauge longitud dada por

$$\begin{aligned}i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \chi^l(\mathbf{r}, t) &= H^l(t) \chi^l(\mathbf{r}, t) \\ &= \left[ \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + e\mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r} \right] \chi^l(\mathbf{r}, t).\end{aligned}\quad (2.62)$$

Tal como ya mencionamos, las funciones de onda de Gordon-Volkov representan la solución exacta de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo para un electrón libre con momento definido oscilando en un campo electromagnético y en la aproximación dipolar. Estas funciones de onda son útiles para describir al electrón liberado en procesos de emisión electrónica inducidos o asistidos por láseres. El contexto ideal para su aplicación corresponde al de campos intensos comparados con el potencial coulombiano del núcleo, o bien para energías del electrón altas, ya que en este caso el electrón se aleja rápidamente del mismo. Estas funciones de onda serán utilizadas a lo largo de toda la tesis.

## 2.3. Cálculo de la amplitud de transición

A continuación vamos a calcular la matriz de transición para emisión electrónica cuando la radiación electromagnética es absorbida por un sistema atómico o molecular. Esta magnitud es de utilidad a la hora de cuantificar la producción de electrones en procesos de ionización inducidos por campos láser. Para mayor simplicidad utilizaremos las unidades atómicas definidas en el Apéndice A.

Dentro de la teoría formal de colisiones, antes y después de la colisión las partículas se agrupan formando agregados. Al reordenamiento anterior y posterior de estos agregados se los denomina canal de entrada (o inicial  $i$ ) y canal de salida (o final  $f$ ). Por ejemplo, para un proceso de fotoionización simple tenemos que

$$\underbrace{n\hbar\omega + B}_{\text{canal de entrada}} \rightarrow \underbrace{B^+ + e}_{\text{canal de salida}} \quad (2.63)$$

donde  $n$  es el número de fotones absorbidos por el blanco  $B$  formado como  $(B^+e)$ .

A cada canal  $\alpha$ , siendo  $\alpha = i, f$ , le corresponde una división del hamiltoniano  $H$  del sistema, considerado en el centro de masa:

$$H = H_\alpha + V_\alpha(t), \quad \alpha = i, f \quad (2.64)$$

donde  $V_\alpha(t) = H - H_\alpha$  es el potencial de interacción entre los agregados en el canal  $\alpha$ , y  $H_\alpha$  es el hamiltoniano no perturbado asociado a dicho canal. Los hamiltonianos no perturbados  $H_i$  y  $H_f$  pueden diferir entre sí.

La amplitud de transición desde el estado  $i$  antes de la interacción, al estado  $f$  después de la interacción, en forma *post* y *prior* se escribe como

$$T_{if}^+ = \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \quad (2.65)$$

$$T_{if}^- = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \phi_i(t) \rangle, \quad (2.66)$$

donde  $\Psi_i^+$  y  $\Psi_f^-$  son las funciones de onda exacta del hamiltoniano  $H$  que satisfacen las ecuaciones

$$\left( H - i \frac{\partial}{\partial t} \right) \Psi_i^+(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (2.67)$$

$$\left( H - i \frac{\partial}{\partial t} \right) \Psi_f^-(\mathbf{r}, t) = 0, \quad (2.68)$$

y verifican las condiciones asintóticas

$$\Psi_i^+(\mathbf{r}, t) \xrightarrow[t \rightarrow -\infty]{} \phi_i(\mathbf{r}, t), \quad (2.69)$$

$$\Psi_f^-(\mathbf{r}, t) \xrightarrow[t \rightarrow +\infty]{} \phi_f(\mathbf{r}, t), \quad (2.70)$$

donde  $\phi_\alpha(\mathbf{r}, t)$  es autofunción del hamiltoniano sin perturbar  $H_\alpha$ , con  $\alpha = i, f$ .

El formalismo de onda distorsionada (Distorted Wave - DW) surge como una aproximación de la teoría de dispersión cuántica, que pretende incorporar parcialmente una perturbación del sistema a través de factores de distorsión en las funciones de onda. El hamiltoniano que describe el sistema de partículas antes y después de la colisión, ec. (2.64), se escribe como

$$H = \underbrace{H_\alpha + U_\alpha}_{H_\alpha^{DW}} + \underbrace{V_\alpha(t) - U_\alpha}_{W_\alpha}, \quad \alpha = i, f \quad (2.71)$$

donde para cada canal  $\alpha$ ,  $W_\alpha$  representa el potencial distorsionado de dicho canal y hemos sumado y restado un potencial  $U_\alpha$ . Las funciones de onda distorsionada  $\chi_{DW,\alpha}^\pm(\mathbf{r}, t)$



con  $\alpha = i, f$ , satisfacen las ecuaciones

$$\left(H - i\frac{\partial}{\partial t}\right) \chi_{DW,i}^+(\mathbf{r}, t) = W_i(t) \chi_{DW,i}^+(\mathbf{r}, t) \quad (2.72)$$

$$\left(H - i\frac{\partial}{\partial t}\right) \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) = W_f(t) \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t), \quad (2.73)$$

sujetas a las condiciones de contorno

$$\chi_{DW,i}^+(\mathbf{r}, t) \xrightarrow[t \rightarrow -\infty]{} \phi_i(\mathbf{r}, t) \quad (2.74)$$

$$\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) \xrightarrow[t \rightarrow +\infty]{} \phi_f(\mathbf{r}, t). \quad (2.75)$$

Dentro de este formalismo, las ecuaciones (2.65) y (2.66) pueden reescribirse en términos de funciones distorsionadas  $\chi_{DW}^\pm(\mathbf{r}, t)$ . Siguiendo los pasos desarrollados en [35], se llega a

$$T_{if}^+ = a_{if}^- - i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) | W_f^\dagger(t) | \Psi_i^+(\mathbf{r}, t) \rangle \quad (2.76)$$

$$T_{if}^- = a_{if}^+ - i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \Psi_f^-(\mathbf{r}, t) | W_i(t) | \chi_{DW,i}^+(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (2.77)$$

con

$$a_{if}^+ = \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \phi_f(t) | \chi_{DW,i}^+(t) \rangle \quad \text{forma } post \quad (2.78)$$

$$a_{if}^- = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle \quad \text{forma } prior. \quad (2.79)$$

El cálculo exacto de la amplitud de transición involucra conocer las funciones de onda exactas  $\Psi_{i,f}^\pm(\mathbf{r}, t)$ . Sin embargo, podemos reemplazar esas funciones por funciones de onda aproximadas sin perturbar, es decir,  $\phi_{i,f}(\mathbf{r}, t)$ . La amplitud de transición dada por las ecs. (2.76) y (2.79) nos queda

$$T_{if}^+ = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle - i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) | W_f^\dagger(t) | \phi_i(\mathbf{r}, t) \rangle. \quad (2.80)$$

Si consideramos que los hamiltonianos sin perturbar de los canales inicial y final son iguales, es decir,  $H_i = H_f$ , entonces el  $\lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle = 0$  por la ortogonalidad entre  $\phi_f$  y  $\phi_i$ , ec. (2.75). De esta manera el primer término de la ecuación (2.80) se puede reescribir de la forma

$$\begin{aligned} \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle &= \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle - \lim_{t \rightarrow +\infty} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle \\ &= - \int_{-\infty}^{\infty} dt \frac{\partial}{\partial t} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle. \end{aligned} \quad (2.81)$$

Luego, calculando la derivada por partes y aplicando la ec. de Schrödinger (2.73), tenemos que la ec. (2.81) se puede escribir como

$$-\int_{-\infty}^{\infty} dt \frac{\partial}{\partial t} \langle \chi_{DW,f}^-(t) | \phi_i(t) \rangle = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \left[ \langle \chi_{DW,f}^-(t) | H | \phi_i(t) \rangle - \langle \chi_{DW,f}^-(t) | W_f^\dagger | \phi_i(t) \rangle + \langle \chi_{DW,f}^-(t) | H_i | \phi_i(t) \rangle \right]. \quad (2.82)$$

Reemplazando la ec. (2.82) en (2.80), y resolviendo, tenemos que la amplitud de transición en la forma *post* se puede escribir como

$$T_{if}^+ = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) | V_i(t) | \phi_i(\mathbf{r}, t) \rangle \quad (2.83)$$

donde  $V_i(t)$  es el potencial perturbativo del canal inicial. Operando de la misma manera para las ecs. (2.77) y (2.78), se puede obtener la amplitud de transición en la forma *prior*.

Para el caso de fotoionización simple dado por la ec. (2.63) donde hay un sólo electrón activo, el núcleo está fijo y los fotones son representados clásicamente a través de un campo electromagnético, el hamiltoniano del sistema se describe en términos de la ec. (2.40),  $H = H_0 + H_{int}(t)$ . La configuración inicial debe representar al electrón ligado al blanco y la interacción con el campo se introduce como una perturbación. Por lo tanto el hamiltoniano  $H$  se divide como una suma que involucra el hamiltoniano sin perturbar  $H_i = H_0 = \mathbf{p}^2/2 + V(r)$ , donde por ejemplo  $V(r) = -Z/r$  para un átomo de hidrógeno, más la perturbación correspondiente a la interacción del campo láser con el electrón  $V_i(t) = H_{int}(t)$ , ec. (2.42).

La amplitud de transición es invariante de gauge si se toman las soluciones exactas de la TDSE, cuando se hacen aproximaciones, ya no vale la invariancia.

A lo largo de esta tesis trabajaremos en el gauge de longitud y en unidades atómicas. Por similitud con la ec. (2.66), se intercambia la notación *post* por *prior* en la ec. (2.83) [36]. De esta manera, la amplitud de transición en la forma *prior*, dentro de la teoría de onda distorsionada y en aproximación dipolar, nos queda de la forma

$$T_{if}^- = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) | \mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r} | \phi_i(\mathbf{r}, t) \rangle \quad (2.84)$$

donde la perturbación viene dada por el hamiltoniano de interacción en el gauge de longitud  $H_{int}^l(t) = \mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r}$ , ec. (2.51),  $\phi_i(\mathbf{r}, t)$  es el estado inicial del sistema y  $\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t)$  es el estado final distorsionado, ambas en el gauge de longitud. La función  $\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t)$ , autoestado de  $H_f^{DW}$ , puede variar dependiendo de la elección que se haga de los operadores  $H_f^{DW}$  y  $W_f$  en la ec (2.71).

Para calcular la amplitud de transición  $T_{if}^-$  necesitamos elegir  $\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t)$  como autoestado del hamiltoniano distorsionado  $H_f^{DW}$ . Dependiendo de cuál se escoja se ob-

tendrán diferentes versiones de la amplitud de transición. El estado final en un proceso de ionización corresponde al electrón emitido interactuando con los otros agregados. Entonces, una primera aproximación es considerar el hamiltoniano  $H_f^{DW} = \mathbf{p}^2/2$  de partícula libre y  $\chi_{DW,f}^-$  una onda plana. Sin embargo este es un cálculo muy elemental y no describe la fuerte influencia del núcleo ni la del láser en el canal final. Otra opción es tomar  $H_f^{DW} = \mathbf{p}^2/2 + V(r)$ . En el caso de un átomo hidrogenoide  $V(r) = -Z/r$ , el autoestado de  $H_f^{DW}$  con momento definido es la onda coulombiana del continuo:

$$\chi_{DW,f}^- = \exp\{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}\} (2\pi)^{-3/2} D_C^-(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \quad (2.85)$$

donde  $D_C^-(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = N(\nu) {}_1F_1(i\nu; 1; -i(kr + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}))$ ,  $N(\nu) = \Gamma(1-i\nu)e^{-\pi\nu/2}$  es el factor de normalización,  ${}_1F_1$  la función hipergeométrica y  $\nu = -Z/k$  el parámetro de Sommerfeld. Tomando  $\nu = 0$  obtenemos la onda plana del caso anterior. La matriz de transición empleando esta función de onda describe razonablemente el proceso de fotoionización para intensidades bajas del campo electromagnético, i.e. para la absorción de un único fotón.

Sin embargo, como en esta tesis estamos interesados en el caso de campos intensos, consideraremos una tercera opción tomando  $H_f^{DW} = \mathbf{p}^2/2 + \mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{r}$ . Según la ec. (2.62), el autoestado  $\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) = \chi_{\mathbf{k}}^l(\mathbf{r}, t)$  resulta ser la función de Gordon-Volkov en el gauge de longitud, ec. (2.61), que en unidades atómicas resulta:

$$\chi_{\mathbf{k}}^V(\mathbf{r}, t) = \exp\{i\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}\} (2\pi)^{-3/2} \exp\left\{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \frac{i}{2} \int_t^\infty dt' (\mathbf{k} + \mathbf{A}(t'))^2\right\}, \quad (2.86)$$

donde hemos omitido el supraíndice  $l$  y en su lugar  $V$  indica que corresponde a la función de Gordon-Volkov. El empleo de esta función de onda final en el cálculo de la matriz de transición da lugar a lo que se conoce como **aproximación de campo fuerte** o **SFA** (Strong Field Approximation), la cual considera que, una vez que el átomo es ionizado, el electrón oscila en el campo eléctrico sin sentir la presencia del núcleo.

Por último, en la **aproximación Coulomb-Volkov** o **CVA** se incluye la interacción con el núcleo remanente incorporando el factor adicional  $D_C^-(\mathbf{k}, \mathbf{r})$  en la onda Gordon-Volkov. De esta manera la función de onda distorsionada del canal final corresponde a:

$$\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) = \chi^{CV-}(\mathbf{r}, t) = \chi_{\mathbf{k}}^V(\mathbf{r}, t) D_C^-(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \quad (2.87)$$

donde el supraíndice  $CV$  hace referencia a la función de Coulomb-Volkov. Con esta función de onda final queda representado el electrón emitido interactuando simultáneamente con el blanco y el campo láser. El hamiltoniano distorsionado en este caso no tiene una expresión simple, y puede hallarse como  $H_f^{DW} = H - W_f$  sabiendo que  $\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t)$  satisface la ec. (2.73).

Se puede observar que la SFA es un caso particular de la CVA tomando el parámetro de Sommerfeld igual a cero, es decir,  $\nu = 0$  [37, 38].

## 2.4. Espectro electrónico en ATI y LAPE

Para cuantificar la emisión de electrones se introduce la probabilidad de ionización que se calcula como el módulo cuadrado de la matriz de transición, es decir,

$$\frac{dP}{d\mathbf{k}} = |T_{if}^-|^2, \quad (2.88)$$

la cual se conoce también como la distribución de momento del fotoelectrón, donde  $T_{if}$  está dada por la ec. (2.84) dentro de la teoría de onda distorsionada. A partir de ella podemos obtener la distribución de energía resuelta en ángulo de emisión descripta por

$$\frac{d^2P}{\sin\theta dE d\theta} = 2\pi k |T_{if}^-|^2. \quad (2.89)$$

Para el caso de ionización inducida por un pulso láser caracterizado con el campo eléctrico  $\mathbf{F}(t)$  dado por la ec. (2.28), tenemos que el sistema atómico puede absorber más fotones que los mínimos necesarios para superar el umbral de ionización. Este proceso se conoce como ionización por encima del umbral (ATI), tal como se mencionó en el primer capítulo. Utilizando como estado final distorsionado la función de onda de Coulomb-Volkov dada por la ec. (2.87) y un estado inicial dado por  $\phi_i(\mathbf{r}, t) = \varphi_i(\mathbf{r})e^{iI_P t}$ , la matriz de transición, ec. (2.84), dentro de la CVA se escribe como

$$\begin{aligned} T_{if}^{CVA-} &= -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \int d^3r \exp \left\{ -i[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)] \cdot \mathbf{r} - \frac{i}{2} \int_t^{\infty} dt' [\mathbf{k} + \mathbf{A}(t')]^2 \right\} (2\pi)^{-3/2} \\ &\quad \times D_C^{-*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \mathbf{r} \cdot \mathbf{F}(t) \varphi_i(\mathbf{r}) e^{iI_P t} \end{aligned} \quad (2.90)$$

donde  $*$  indica que es el complejo conjugado. Reordenando la ec. (2.90) tenemos que

$$\begin{aligned} T_{if}^{CVA-} &= -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp \left\{ -i \int_t^{\infty} dt' \left[ \frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t')]^2}{2} + I_P \right] \right\} \mathbf{F}(t) \cdot \\ &\quad \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3r \exp \{ -i[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)] \cdot \mathbf{r} \} D_C^{-*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \mathbf{r} \varphi_i(\mathbf{r}). \end{aligned} \quad (2.91)$$

Llamando  $S(t)$  a

$$S(t) = - \int_t^{\infty} dt' \left[ \frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t')]^2}{2} + I_P \right] \quad (2.92)$$

y reconociendo que la integral espacial corresponde al elemento dipolar dado por

$$\mathbf{d}^{CVA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3r \exp \{-i[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)] \cdot \mathbf{r}\} D_C^{-*}(\mathbf{k}, \mathbf{r}) \mathbf{r} \varphi_i(\mathbf{r}). \quad (2.93)$$

Finalmente, la amplitud de transición dentro de la CVA [ec (2.91)] se reescribe como

$$T_{if}^{CVA-} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{iS(t)} \mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{d}^{CVA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)). \quad (2.94)$$

En forma similar es posible obtener una expresión para la matriz de transición dentro de la SFA utilizando la ec. (2.85) en lugar de la ec. (2.86). Para ello tomamos igual a cero el parámetro de Sommerfeld ( $\nu$ ) dentro de la distorsión  $D_C^{-*}(\mathbf{k})$  en la ec. (2.93). De esta manera el elemento dipolar dentro de la SFA nos queda de la forma

$$\mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3r \exp \{-i[\mathbf{A}(t) + \mathbf{k}] \cdot \mathbf{r}\} \mathbf{r} \varphi_i(\mathbf{r}) \quad (2.95)$$

y la matriz de transición está dada por

$$T_{if}^{SFA-} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{iS(t)} \mathbf{F}(t) \cdot \mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)). \quad (2.96)$$

Si la duración del campo eléctrico es finita, la integración temporal se lleva a cabo en el intervalo de tiempo donde el campo  $\mathbf{F}(t)$  es distinto de cero.

Por otra parte, cuando la ionización es producida por un pulso con alta frecuencia, típicamente en el XUV, en presencia de (o asistido por) un láser infrarrojo IR tenemos un proceso ATI producido por pulsos de dos colores XUV+IR. En este caso conocido como **fotoionización asistida por láser** o bien **LAPE**, el campo total  $\mathbf{F}(t)$  se expresa como la suma de los campos XUV e IR, es decir:

$$\mathbf{F}(t) = \mathbf{F}_X(t) + \mathbf{F}_L(t), \quad (2.97)$$

cuyo potencial vector es de la forma  $\mathbf{A}(t) = - \int_0^t dt' [\mathbf{F}_X(t') + \mathbf{F}_L(t')] y \mathbf{F}_X(t)$  representa al campo eléctrico del láser XUV y  $\mathbf{F}_L(t)$  representa al campo eléctrico del láser IR. Las matrices de transición en este caso se escriben igual que las ecs. (2.94) y (2.96) pero utilizando el campo total definido en la ec. (2.97).

Un camino posible para calcular la matriz de transición de la ec. (2.96) en la SFA consiste en aplicar la aproximación de punto silla (o SPA saddle point approximation)[39–42]. Bajo esta aproximación la integral temporal se reduce a una sumatoria sobre tiempos que anulan la derivada de la fase  $S(t)$ , que es cuando se produce la mayor contribución a la integral. Cada uno de estos tiempos se conoce como tiempo de ionización  $t_s$  y corresponde al instante en el que el electrón "aparece" en el continuo. A

cada tiempo de ionización se le asocia una trayectoria clásica del electrón y esta aproximación corresponde al **modelo semiclásico** (SCM). Por otra parte el Simple man's Model (SMM) presentado en el capítulo 1 es aún más restrictivo que el SCM puesto que considera que el electrón emitido a tiempo  $t_s$  sale con velocidad nula. Con el uso de este modelo, para ionización atómica producida por un campo láser IR, Arbó *et al* [43–45] lograron escribir la probabilidad de ionización dada por la ec. (2.88) como el producto de dos factores que involucran las interferencias entre trayectorias del electrón que son emitidos en distintos ciclos ópticos del láser (*interferencias interciclo*) y en un mismo ciclo (*interferencias intraciclo*). Cada uno de los factores da lugar, en el espectro del fotoelectrón, a la formación de los bien conocidos picos ATI equiespaciados en energía, y a una modulación de los mismos. El cálculo detallado de este resultado se muestra en el Apéndice B ya que nos será de utilidad en los capítulos siguientes.

Uno de los objetivos principales de esta tesis es encontrar, dentro del modelo semiclásico, una expresión analítica para la probabilidad de ionización atómica debido a la presencia de láseres XUV+IR (procesos LAPE). De esta manera, al espectro de energía del fotoelectrón podríamos interpretarlo en términos de los factores *inter-* e *intraciclo* en semejanza con el caso ATI. En los siguientes capítulos se detallarán los cálculos llevados a cabo para procesos ATI y LAPE.

## Capítulo 3

# Energía ponderomotriz dependiente del tiempo en ATI

En este capítulo vamos a analizar la contribución de la energía cinética *quiver* al balance de energía total en la fotoionización por campos láser que involucran pocos ciclos y envolventes que varían rápidamente con la intensidad. A través del promedio temporal de esta cantidad, estudiaremos el concepto de energía ponderomotriz  $U_P$  y cómo esto influye en el espectro de energía del fotoelectrón a través de un modelo semiclásico.

### 3.1. Introducción

Hasta el momento vimos que los procesos de ionización por encima del umbral (ATI) se han estudiado de forma extensa desde su primera observación [19, 46]. Para intensidades del láser en aumento, se observó la aparición de picos en el espectro del fotoelectrón ubicados en valores de energía más altos mientras que a energías más bajas eran suprimidos considerablemente (ver figura 1.1). Esta supresión de picos se entendió al introducir el concepto de energía ponderomotriz  $U_P$  y es por este motivo que se incorpora una corrección en la ecuación para la conservación de energía, resultando en la ec. (1.3).

Para un campo láser periódico y con una envolvente que varía de forma suave en el tiempo, vimos en la subsección 2.1.4 que la energía cinética del electrón promediada en un ciclo se puede escribir como la suma de dos contribuciones, una proveniente del movimiento de deriva y otra proviente del movimiento *quiver* puramente oscilatorio [ver ec. (2.32)]. Sin embargo, cuando el pulso es finito como los que se logran hoy en día, con pocos ciclos de oscilación y con envolvente temporal que varía de ciclo a ciclo, es necesario que el concepto de energía ponderomotriz sea revisado, ya que el promedio de la energía cinética no es el mismo ciclo a ciclo y por lo tanto no es una cantidad

definida. De hecho, para ionización de Argón producida por un pulso de pocos ciclos con envolvente seno cuadrado, Wickenhauser *et al* [47] observaron subestructuras en los picos ATI del espectro del fotoelectrón que se deben a los diferentes valores de energía ponderomotriz. A medida que la intensidad del láser cambia rápidamente en un período de tiempo relativamente corto, diferentes valores de energía ponderomotriz pueden ser considerados para cada ciclo óptico.

Por este motivo, en el presente capítulo vamos a estudiar el concepto de energía ponderomotriz  $U_P$  bajo una mirada cuántica y luego vamos a analizar su influencia en el espectro electrónico para ionización del átomo de Hidrógeno producida por un pulso láser corto IR.

En la subsección 2.1.4 analizamos la dinámica de un electrón libre oscilando en un campo electromagnético clásico, definiendo la energía ponderomotriz  $U_P$  como una contribución a la energía cinética [ver ec. (2.33)] proveniente del movimiento *quiver*. A continuación vamos a buscar una definición cuántica para  $U_P$  utilizando la función de onda de Gordon-Volkov [33, 48], que como se dijo anteriormente, describe el movimiento de un electrón libre oscilando en un campo electromagnético y es solución de la TDSE ec. (2.52) que en unidades atómicas resulta:

$$\chi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}, t) = (2\pi)^{-3/2} \exp \left[ i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \frac{i}{2} \int_{t_0}^t [\mathbf{k} + \mathbf{A}(t')]^2 dt' \right]. \quad (3.1)$$

Debido a la dependencia temporal del Hamiltoniano  $H(t)$  en la ec. (2.52), la energía no es una constante de movimiento y el estado de Gordon-Volkov no es estacionario. Por lo tanto su energía (pensada como autovalor de  $H$ ) no se encuentra definida. En consecuencia, también el valor medio de  $H(t)$  es dependiente del tiempo: sustituyendo la ec. (3.1) en la ec. (2.52), es fácil encontrar que

$$\frac{\langle \chi_{\mathbf{k}} | H(t) | \chi_{\mathbf{k}} \rangle}{\langle \chi_{\mathbf{k}} | \chi_{\mathbf{k}} \rangle} = \mathbf{k} \cdot \mathbf{A}(t) + \frac{\mathbf{k}^2}{2} + \frac{|\mathbf{A}(t)|^2}{2}. \quad (3.2)$$

Una aproximación razonable para la definición de energía del estado del electrón, se puede lograr tomando el promedio temporal de la ec. (3.2) sobre un ciclo óptico del campo láser  $T$ . Por lo tanto,

$$\frac{1}{T} \int_t^{t+T} dt' \frac{\langle \chi_{\mathbf{k}} | H(t') | \chi_{\mathbf{k}} \rangle}{\langle \chi_{\mathbf{k}} | \chi_{\mathbf{k}} \rangle} = \frac{\mathbf{k}^2}{2} + \underbrace{\frac{1}{T} \int_t^{t+T} dt' \frac{|\mathbf{A}(t')|^2}{2}}_{U_P}, \quad (3.3)$$

donde consideramos que el término  $\mathbf{k} \cdot (1/T) \int_t^{t+T} \mathbf{A}(t) = 0$  para un campo láser  $\mathbf{F}(t)$  dado por la ec. (2.28) con período de oscilación  $T = 2\pi/\omega$  y una envolvente que varía de forma suave en el tiempo. Para este tipo de pulsos la integral temporal  $U_P$  en la ec.



(3.3) es independiente de  $t$ .

De la misma forma que en la descripción clásica de la subsección 2.1.4 a través de la ec. (2.32), podemos identificar en la última ecuación las contribuciones de energía cinética provenientes de los movimientos de deriva y *quiver* del electrón, como el primer y segundo término de la ec. (3.3), respectivamente.

Una forma de simplificar la TDSE dada por la ec. (2.52), se logra a través de una transformación de gauge. Para ello vamos a calcular el valor medio del hamiltoniano en los gauges de longitud ( $l$ ) y velocidad ( $v$ ), respectivamente, es decir,

$$\frac{\langle \chi_{\mathbf{k}}^i | H^i(t) | \chi_{\mathbf{k}}^i \rangle}{\langle \chi_{\mathbf{k}}^i | \chi_{\mathbf{k}}^i \rangle}, \quad i = v, l \quad (3.4)$$

donde  $\chi_{\mathbf{k}}^i$  y  $H^i(t)$  son el estado de Gordon-Volkov y el hamiltoniano del sistema para cada gauge, respectivamente. Los estados de Gordon-Volkov están dados por las ecuaciones ecs. (2.61) y (2.53), que en unidades atómicas nos quedan de la forma

$$\chi_{\mathbf{k}}^l(\mathbf{r}, t) = \exp[i\mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}] \chi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}, t) \quad (3.5)$$

$$\chi_{\mathbf{k}}^v(\mathbf{r}, t) = \exp\left[i \int_{t_0}^t dt' \frac{\mathbf{A}^2(t')}{2}\right] \chi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}, t), \quad (3.6)$$

los cuales son soluciones de la TDSE [ecs. (2.62) y (2.54) en u.a.] asociadas a los hamiltonianos  $H^{l,v}(t)$ , respectivamente. De esta manera, el valor medio del hamiltoniano en el gauge de longitud es:

$$\frac{\langle \chi_{\mathbf{k}}^l | H^l(t) | \chi_{\mathbf{k}}^l \rangle}{\langle \chi_{\mathbf{k}}^l | \chi_{\mathbf{k}}^l \rangle} = \mathbf{k} \cdot \mathbf{A}(t) + \frac{\mathbf{k}^2}{2} + \frac{|\mathbf{A}(t)|^2}{2} + \mathbf{F}(t) \cdot \langle \chi_{\mathbf{k}}^l | \mathbf{r} | \chi_{\mathbf{k}}^l \rangle, \quad (3.7)$$

donde  $\langle \chi_{\mathbf{k}}^l | \mathbf{r} | \chi_{\mathbf{k}}^l \rangle = \int d\mathbf{r} \chi_{\mathbf{k}}^{l*} \mathbf{r} \chi_{\mathbf{k}}^l$ , y en el gauge de velocidad resulta

$$\frac{\langle \chi_{\mathbf{k}}^v | H^v(t) | \chi_{\mathbf{k}}^v \rangle}{\langle \chi_{\mathbf{k}}^v | \chi_{\mathbf{k}}^v \rangle} = \mathbf{k} \cdot \mathbf{A}(t) + \frac{\mathbf{k}^2}{2}. \quad (3.8)$$

Para campos eléctricos  $\mathbf{F}(t)$  con envolvente constante y periódicos en el tiempo como los que hemos considerado hasta aquí, se puede comprobar que el promedio temporal de la ec. (3.7) verifica también la ec. (3.3). Sin embargo, cuando se toma el promedio temporal de la ec. (3.8) (gauge de velocidad), no queda presente la contribución de la energía ponderomotriz  $U_P$ . Como se mencionó en el capítulo anterior las interpretaciones físicas del problema dependen del gauge que se utilice para describir el proceso físico.

De acuerdo a los resultados obtenidos de las ecs. (3.7) y (3.8) decidimos trabajar en el gauge de longitud dado que el valor medio de la energía en dicho gauge involucra ambos movimientos de deriva y *quiver* presentes en la ecuación para la energía del electrón [ver ec. (2.32)]. Sin embargo, es conveniente mencionar que en la actualidad a

veces se utiliza como definición de la función de onda de Volkov en el gauge de velocidad la ecuación (3.1) (sin transformar) en lugar de la definición que utilizamos en esta tesis [ec. (3.6)].

### 3.2. Dependencia de la energía ponderomotriz con la envolvente e influencia en el espectro ATI

En el capítulo 2 vimos que el campo electromagnético puede considerarse monocromático cuando el pulso láser es largo o involucra decenas de ciclos ópticos o más. Éste no es el caso cuando el pulso es corto, con duración de unos pocos ciclos ópticos. En un pulso corto tenemos que tener en cuenta el tipo de envolvente que consideremos para describir el campo eléctrico que lo caracteriza, puesto que si en un período corto de tiempo la misma varía de forma abrupta con la intensidad entonces su energía ponderomotriz no se encontrará bien definida, ya que la integral de la ec. (2.33) puede depender del intervalo temporal donde se realice el promedio.

Para pulsos láser de duración finita descriptos a través de la ec. (2.28), con una frecuencia principal  $\omega$ , es posible definir un período de oscilación como  $T = 2\pi/\omega$  y de esta manera identificar un ciclo  $j$  en el intervalo temporal entre  $(j-1)T$  y  $jT$ , con  $j = 1, \dots, N$  y  $N$  el número total de ciclos. Por lo tanto, el promedio de la energía en la ec. (3.2) depende del ciclo  $j$  a través de:

$$\frac{1}{T} \int_{(j-1)T}^{jT} \frac{\langle \chi_{\mathbf{k}} | H(t) | \chi_{\mathbf{k}} \rangle}{\langle \chi_{\mathbf{k}} | \chi_{\mathbf{k}} \rangle} dt = \frac{\mathbf{k} \cdot \Delta \boldsymbol{\alpha}(j)}{T} + \frac{\mathbf{k}^2}{2} + U_P(j), \quad (3.9)$$

donde hemos introducido una energía ponderomotriz que depende del ciclo óptico  $j$  como

$$U_P(j) = \frac{1}{T} \int_{(j-1)T}^{jT} \frac{|\mathbf{A}(t')|^2}{2} dt' \quad (3.10)$$

y

$$\Delta \boldsymbol{\alpha}(j) = \boldsymbol{\alpha}(jT) - \boldsymbol{\alpha}((j-1)T) = \int_{(j-1)T}^{jT} \mathbf{A}(t') dt'.$$

Para una variación lenta de la envolvente, la contribución positiva del potencial vector es prácticamente igual a la negativa durante un ciclo de oscilación. De esta manera, el término  $\Delta \boldsymbol{\alpha}(j)$  puede despreciarse o bien considerarse muy pequeño. Como tenemos que la integración temporal de  $\mathbf{A}(t)$  sobre toda la duración del pulso es cero [ver ec. (2.22)], entonces, la suma de estas pequeñas contribuciones debe ser cero  $\sum_j \Delta \boldsymbol{\alpha}(j) = 0$ .

Para ilustrar la dependencia de la energía ponderomotriz con la envolvente, vamos

a considerar un pulso láser linealmente polarizado, modelado por el campo eléctrico

$$\mathbf{F}_i(t) = F_{0i}(t) \cos(\omega t) \mathbf{e}_z, \quad (3.11)$$

donde  $\mathbf{e}_z$  es la dirección de polarización y vamos a considerar tres tipos de envolventes  $F_{0i}(t)$ , donde

$$F_{01}(t) = F_0 \quad (3.12a)$$

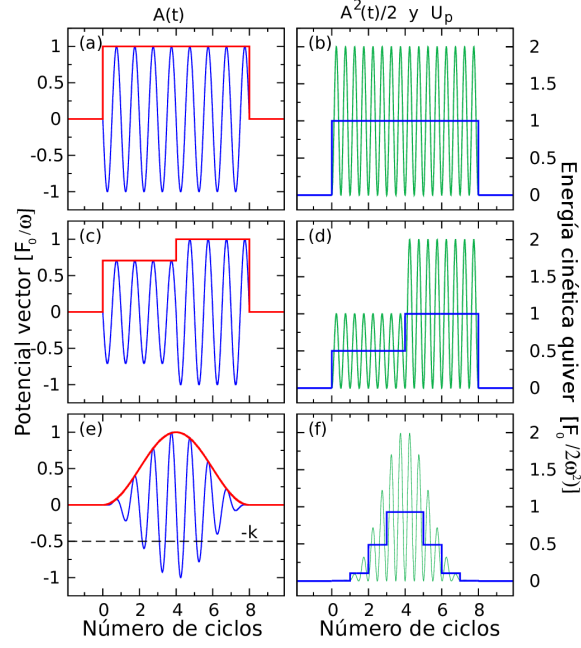
$$F_{02}(t) = \begin{cases} F_1, & \text{if } 0 < t < t_1 \\ 0, & \text{if } t_1 < t < t_2 \\ F_2, & \text{if } t_2 < t < \tau \end{cases} \quad (3.12b)$$

$$F_{03}(t) = F_0 \sin^2(\pi t/\tau), \quad (3.12c)$$

y cero fuera del intervalo de tiempo  $[0, \tau]$ , donde  $\tau = NT$  es la duración total del pulso con  $N$  el número de ciclos. El primer pulso posee una envolvente constante, mientras que el segundo está caracterizado por una envolvente que involucra distintas amplitudes del campo. De esta manera, este pulso se puede escribir como la contribución de dos pulsos con envolventes constantes cada uno de ellos, los cuales se encuentran separados entre sí por un retardo temporal  $t_2 - t_1$  [ver Fig. (C.1)], que cuando  $t_2 = t_1$  corresponde a un pulso con envolvente escalón. El tercer pulso posee una envolvente seno cuadrado donde la variación en amplitud de campo se va dando de manera continua y cuya forma es más realista para representar un pulso experimental.

En la Figura 3.1 se muestran esquemáticamente las envolventes  $F_{i0}(t)$ , el vector potencial  $A_i(t)$ ,  $A_i^2(t)/2$  y  $U_P(j)$ , para estos tres pulsos láser con igual número de ciclos  $N = 8$ . En las Figs. 3.1(a) y (b) consideramos una envolvente plana, con todos los ciclos idénticos entre sí, de manera que la energía ponderomotriz es constante e igual a  $(F_0/2\omega)^2$  a lo largo de todo el pulso. En cambio, para envolventes con un escalón [ $t_1 = t_2$  en la ec. (3.12b)] y seno cuadrado [Eq. (3.12c)], se muestra claramente la dependencia de la energía ponderomotriz  $U_P(j)$  con el ciclo  $j$  donde se realiza el promedio [ver Figs. 3.1 (d) and (f)]. A pesar de esto, es común encontrar en la literatura un valor único de la energía ponderomotriz dado por  $U_P^0 = (F_0/2\omega)^2$ , con  $F_0$  el valor máximo de la envolvente.

Una pregunta que surge al realizar este análisis es cuál de todos los posibles valores de energía ponderomotriz es el que determina la posición de los picos ATI según la ec. (1.3). Esto lo analizaremos en la sección siguiente. Por otra parte queremos corroborar si  $\Delta\alpha(j)$  se puede despreciar en estos tres casos de estudio. Para campos con envolventes planas o escalón con un número entero de ciclos [Fig. 3.1(a) y (c)] es claro que  $\Delta\alpha(j) = 0$ . En cambio, para la envolvente seno cuadrado, si bien no se anula esta cantidad, se



**Figura 3.1:** Potencial vector del láser (columna izquierda) y  $A^2(t)/2$  (columna derecha) como función del tiempo en unidades del número de ciclos  $j = \omega t/2\pi$ , para tres envolturas: plana (a-b), un escalón (c-d), y seno cuadrado (e-f). La duración del pulso láser es equivalente a ocho ciclos. Aquí  $F_1 = F_0/\sqrt{2}$ ,  $F_2 = F_0$  y  $t_1 = t_2 = \tau/2$ . Columna izquierda: Amplitud del potencial vector  $A(t)$  en línea azul, en unidades de  $F_0/\omega$ , y envoltura del láser en línea roja. Columna derecha:  $A^2(t)/2$  en línea verde y su promedio en un ciclo  $j$ ,  $U_P(j)$ , en línea azul y en unidades de  $(F_0/2\omega)^2$ .

puede demostrar que  $\Delta\alpha(j)$  decrece a medida que el número de ciclos  $N$  aumenta, y se vuelve despreciable en el medio del pulso ( $j \sim \frac{N}{2}$ ), donde la intensidad del láser (y la probabilidad de emisión electrónica) es máxima.

Para poder analizar la contribución de la energía ponderomotriz al balance de energía del sistema, vamos a estudiar la ionización del átomo de hidrógeno desde el estado  $1s$  por pulsos láser cortos con parámetros de frecuencia y amplitud tales que el valor indicador de la energía ponderomotriz  $U_P^0 = (F_0/2\omega)^2$  sea comparable a la separación de los picos ATI, es decir, a  $\omega$  y por lo tanto la ecuación (1.3) sea sensible a las variaciones de  $U_P$ .

La probabilidad de ionización viene dada por la ec. (2.88) y la probabilidad diferencial del electrón emitido con energía  $E = k^2/2$ , se obtiene como

$$\frac{dP}{dE} = 2\pi \int k |T_{if}|^2 d(\cos \theta) \quad (3.13)$$

donde  $T_{if}$  es la amplitud de transición en la forma *prior* dentro de la teoría de onda distorsionada, en aproximación dipolar y en el gauge de longitud, dada por la ec. (2.84). Dentro de las aproximaciones CVA y SFA, la  $T_{if}$  corresponde a las expresiones dadas por las ecs. (2.94) y (2.96), respectivamente.

El modelo semiclásico (SCM) resulta de resolver la ec. (2.96) por la aproximación del

punto silla. Para el caso de ionización por un láser IR, ésta aproximación da tiempos de emisión complejos [ver Apéndice B]. De esta forma, la integral temporal en la amplitud de transición se reemplaza por una sumatoria coherente de trayectorias clásicas del electrón asociadas a tiempos de ionización  $t_s$ , los cuales se calculan anulando la primera derivada de la fase en la ec. (2.96), es decir,  $\dot{S}(t_s) = 0$ . Para  $S(t)$  definida en la ec. (2.92), los tiempos de ionización satisfacen que

$$\frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} = -I_P, \quad (3.14)$$

El Simple man's model (SMM) consiste en considerar sólo tiempos de emisión que son reales, es decir, que  $I_P = 0$  en la ecuación (3.14), y de esta forma

$$\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s) = 0, \quad (3.15)$$

que representa la condición inicial para el electrón emitido al continuo con velocidad cero.

### 3.2.1. Pulsos planos

De acuerdo a lo desarrollado por Arbó *et al* en Refs. [43, 44], ver también Apéndice B, la matriz de transición dentro del SCM puede escribirse como

$$T_{if}^- = G(\mathbf{k}) \sum_{j=1}^N \sum_{\alpha=1}^2 \exp [iS(t^{(j,\alpha)})], \quad (3.16)$$

donde  $j$  es el número total de ciclos del láser y  $\alpha = 1, 2$  hace referencia al número de trayectorias clásicas en un ciclo  $j$  que alcanzan un momento final  $\mathbf{k}$  y  $G(\mathbf{k})$  es la amplitud de ionización independiente de los tiempos de ionización dada por la ec. (B.11). Para un pulso plano de  $N$ -ciclos (con envolvente definida por la ec. (3.12a) y Fig. 3.1(a), existen dos tiempos de ionización por cada ciclo óptico  $j$  que son soluciones de la ecuación (3.15), denotados por  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$ . De acuerdo al desarrollo presentado en el Apéndice B, la acción promedio y acumulada evaluadas en estos tiempos resultan:

$$\Delta S = S(t^{(j,1)}) - S(t^{(j,2)}) \quad (3.17)$$

$$\bar{S}_j = \frac{S(t^{(j,1)}) + S(t^{(j,2)})}{2} = S_0 + j\tilde{S}, \quad (3.18)$$

donde la acción acumulada  $\Delta S$  entre los tiempos de emisión  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$  es independiente del ciclo  $j$ , mientras que la acción promedio  $\bar{S}_j$  sobre el ciclo  $j$ , depende linealmente del ciclo con  $\tilde{S} = \frac{2\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + U_P^0 + I_P \right)$  y  $S_0 = -\tilde{S}/2 - kF_0/\omega^2$  con  $U_P^0 = (F_0/2\omega)^2$ . Aplicando las ecs. (3.17) y (3.18) en la ec. (3.16), la amplitud de transición nos queda

de la forma

$$T_{if}^- = 2 G(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S}{2}\right) \frac{\sin(N\tilde{S}/2)}{\sin(\tilde{S}/2)} e^{i(S_0 + \frac{N+1}{2}\tilde{S})}, \quad (3.19)$$

Cuando se considera el módulo cuadrado de la ec. (3.19), el factor  $\cos^2(\Delta S/2)$  toma en cuenta la interferencia *intraciclo* de pares de trayectorias del electrón que nacen en diferentes tiempos, separadas por  $t^{(j,1)} - t^{(j,2)}$ . Por otra parte, el factor  $\sin^2(N\tilde{S}/2)/\sin^2(\tilde{S}/2)$ , es el responsable de la interferencia *interciclo*, que para un pulso con un número de ciclos muy grande,  $N \rightarrow \infty$ , se vuelve una secuencia de funciones delta, situadas en valores de energías  $E_n$  dados por

$$E_n = n\omega - I_P - U_P^0 \quad (3.20)$$

que son los bien conocidos picos ATI. Aquí observamos que el valor de energía ponderomotriz que determina su posición corresponde a  $U_P^0$ , como se esperaba para un pulso con envolvente constante.

### 3.2.2. Pulsos con envolvente de pocos escalones: interferencia interpulso

Vamos a suponer ahora un pulso láser de  $N$ -ciclos modelado por una envolvente  $F_{02}(t)$  definida por dos pulsos planos de distintas amplitudes [ec. (3.12b)], donde los pulsos están separados por un intervalo de tiempo  $\Delta t_{12} = t_2 - t_1$ . Esta última condición nos permitirá ver la dependencia del patrón de interferencia con la separación temporal de los pulsos. Asumiremos que el retardo temporal  $\Delta t_{12}$ , corresponde a un número entero de ciclos  $M = \Delta t_{12}/T$ , con  $T = 2\pi/\omega$  [ver Fig. C.1 del Apéndice C]. Entonces tenemos que la primera parte del pulso corresponde a un pulso plano de  $N_1$ -ciclos con una amplitud de campo  $F_1$ , mientras que la segunda parte corresponde a un pulso plano de  $N_2$ -ciclos con amplitud de campo de  $F_2$ , donde  $N_1 = t_1/T$ ,  $N_2 = (\tau - t_2)/T$  y donde el número total de ciclos corresponde a  $N = N_1 + M + N_2$ .

Dado que la perturbación se descompone en dos contribuciones temporales, la amplitud de transición puede escribirse como la suma de las amplitudes de ionización correspondientes a cada componente del pulso  $T_{if} = T_1 + T_2$  [ver Apéndice C]. Por lo tanto, la distribución de momento se escribe como

$$\frac{dP}{d\mathbf{k}} = |T_1|^2 + |T_2|^2 + 2|T_1||T_2|\cos\Phi, \quad (3.21)$$

donde cada término  $T_i$  (con  $i = 1, 2$ ) puede expresarse como la ec. (3.19) reemplazando  $N$  por  $N_i$  y utilizando  $F_i$  en las definiciones de  $\Delta S$  y  $\tilde{S}$ . Así, los primeros dos términos en la ec. (3.21) corresponden a la probabilidad de emisión electrónica individual. Cada uno de ellos tiene la típica estructura de picos ATI a energías del electrón dadas por la

ec. (3.20), con sus valores de energía ponderomotriz correspondientes  $U_{P1} = (F_1/2\omega)^2$  y  $U_{P2} = (F_2/2\omega)^2$ . El tercer término en la ec. (3.21) toma en cuenta la interferencia entre las dos contribuciones que llamamos interferencia *interpulso*. Después de un poco de álgebra guiada en el Apéndice C, la fase  $\Phi$  puede escribirse como

$$\begin{aligned} \Phi = & \frac{N_1\pi}{\omega} \left( I_P + \frac{k^2}{2} + U_{P1} \right) + \frac{N_2\pi}{\omega} \left( I_P + \frac{k^2}{2} + U_{P2} \right) \\ & + \Delta t_{12} \left( I_P + \frac{k^2}{2} \right) + \frac{k}{\omega^2} (F_1 - F_2). \end{aligned} \quad (3.22)$$

Se puede observar que si la fase  $\Phi = \ell\pi$  con  $\ell$  un número entero, la probabilidad de emisión tendrá máximos (interferencia constructiva) o mínimos (destruktiva) dependiendo si  $\ell$  es par o impar, respectivamente. En estos casos, la probabilidad de emisión resulta

$$\frac{dP}{d\mathbf{k}} = (|T_1| + (-1)^\ell |T_2|)^2. \quad (3.23)$$

Para identificar las estructuras de la interferencia interpulso, que se suma a los espectros del fotoelectrón individuales (originados desde cada contribución del pulso) resulta conveniente considerar la separación entre dos “picos de interferencia interpulso” sucesivos (con  $\ell$  impar, por ejemplo) en el espectro del fotoelectrón. Para ello, consideramos la ecuación  $\Phi = \ell\pi$  que es cuadrática para el momento del electrón y para cada valor de  $\ell$  se puede hallar  $k_\ell$  que la satisface. Luego se puede ver que:

$$2\pi = (k_{\ell+2}^2 - k_\ell^2) \frac{\pi(N+M)}{2\omega} + (k_{\ell+2} - k_\ell) \frac{(F_1 - F_2)}{\omega^2}. \quad (3.24)$$

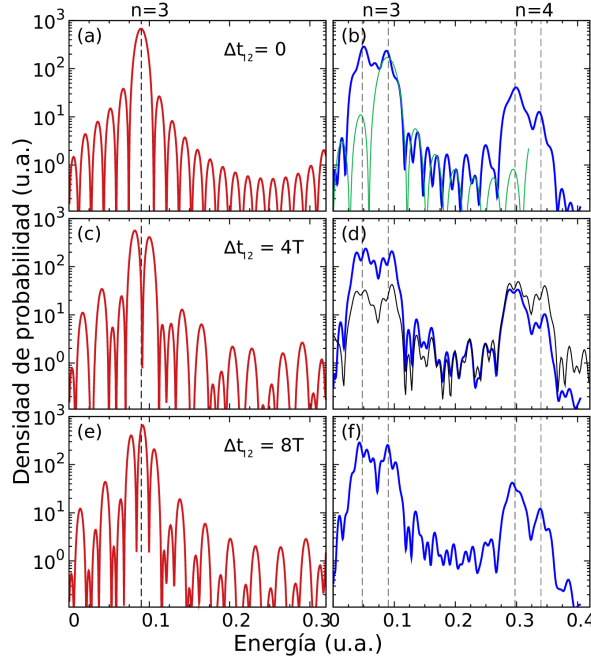
Esta interferencia interpulso se observa como una estructura fina en cada pico interciclo. En particular, cuando consideramos dos escalones idénticos ( $F_1 = F_2$  con  $N_1 = N_2$ ), la probabilidad de ionización en la ec. (3.21) resulta

$$\frac{dP}{d\mathbf{k}} = 4 |T_1|^2 \cos^2(\Phi/2) \quad (3.25)$$

y la fase se reduce a  $\Phi = t_2 \left( I_P + \frac{k^2}{2} \right) + t_1 U_{P1} = t_1 \left( I_P + \frac{k^2}{2} + U_{P1} \right) + \Delta t_{12} \left( I_P + \frac{k^2}{2} \right)$ . En esta situación, la interferencia interpulso actúa como una modulación oscilatoria sobre el espectro del fotoelectrón individual y se vuelve destructiva o constructiva de acuerdo al retardo temporal entre los pulsos  $\Delta t_{12}$  [ver Fig. 3.2].

Para poder ilustrar la interferencia interpulso, evaluamos el espectro del fotoelectrón dentro del modelo semiclásico para la ionización del átomo de hidrógeno desde el estado 1s. Para ello, consideramos pulsos láser con envolvente dada por la ec. (3.12b).

En la Fig. 3.2, presentamos el espectro del fotoelectrón para amplitudes del láser de  $F_1 = 0,2$  u.a. y  $F_2 = 0,2$  y  $0,225$  u.a. en las columnas izquierda y derecha, respectivamente. En las filas, vamos a considerar distintos retardos temporales entre los pulsos,



**Figura 3.2:** Espectro del fotoelectrón ATI para H(1s) obtenido dentro del SCM para pulsos láser con envolventes dadas por la ec. (3.12b) con  $\omega = 0,25$  u.a.,  $N_1 = N_2 = 8$  ciclos y  $F_1 = 0,2$  u.a.. Columna izquierda (en línea roja): caso de dos pulsos idénticos con  $F_1 = F_2$ . Columna derecha (en línea azul):  $F_2 = 0,225$  u.a.. En línea vertical punteada se indica la posición de los picos ATI siguiendo la ec. (1.3) con valores de  $U_{P1}$  y  $U_{P2}$ . Los índices superiores  $n = 3$  o  $4$  indican el número de fotones absorbidos. En los casos (a-b), (c-d) y (e-f) el retardo temporal entre las dos partes del pulsos están dados por  $0, 4$  and  $8$  número de ciclos, respectivamente. En (b) el espectro del fotoelectrón para un pulso plano con número de ciclos igual a  $8$  en línea verde. En (d) el espectro del fotoelectrón en la CVA con línea negra.

dado por  $\Delta t_{12} = 0, 4T$  y  $8T$ . Mientras que la frecuencia  $\omega = 0,25$  u.a. y número de ciclos  $N_1 = N_2 = 8$  son los mismos para todos los casos.

En la primera fila de la Fig. 3.2, se muestra el espectro del electrón para un retardo temporal entre los pulsos igual a cero  $\Delta t_{12} = t_2 - t_1 = 0$ . En la Fig. 3.1 (a), consideramos dos pulsos con igual amplitud  $F_1 = F_2 = F_0$ . Esto significa que los pulsos forman un pulso plano con amplitud  $F_0$  y energía ponderomotriz definida por  $U_P = U_P^0 = (F_0/2\omega)^2$  [ver Fig. 3.1 (b)]. Como resultado se tiene que el espectro del fotoelectrón es equivalente al obtenido por un pulso láser plano de  $N = 16$  ciclos, donde el pico ATI que se muestra en la figura corresponde a la absorción de  $n = 3$  fotones de acuerdo con la ec. (3.20).

En la Fig. 3.2 (b) se muestra la distribución de energía cuando los dos pulsos tienen distintas amplitudes. Observamos la presencia de picos ATI situados en valores de energía del electrón dados por la ec. (3.20) marcadas con líneas de puntos. Las energías ponderomotriz asociadas a cada valor de energía están dadas por  $U_{P1} = (F_1/2\omega)^2$  y  $U_{P2} = (F_2/2\omega)^2$ , respectivamente. La separación en energía entre estos dos picos concuerda con la predicción  $\Delta E = U_{P2} - U_{P1} = (F_2^2 - F_1^2)/4\omega^2 = 0,0425$  u.a.. En línea verde agregamos el espectro del fotoelectrón correspondiente a un pulso con amplitudes  $F_1 = 0,2$  u.a. y  $F_2 = 0$ , o sea apagando el segundo pulso, donde se exhibe la contribución



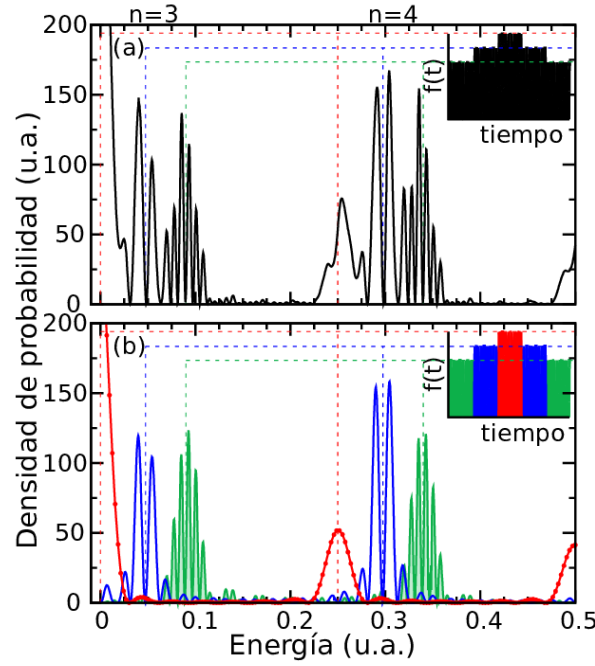
del pico ATI al espectro de energía para una absorción de  $n = 3$  fotones. Comparando ambos espectros (con y sin el segundo pulso), se puede decir que la presencia del campo con amplitud  $F_2$  no solamente produce un segundo pico ATI en  $E = 0,09$  u.a., de acuerdo a la ec. (3.20) con  $U_{P2} = (F_2/2\omega)^2$ , sino también produce estructuras sobre los picos principal y lateral, que provienen de la interferencia interpulso discutida anteriormente.

Cuando el retardo temporal entre los pulsos  $\Delta t_{12}$  es distinto de cero, como se observa en las columnas del medio e inferiores de la Fig. 3.2 para  $\Delta t_{12} = 4T$  y  $8T$ , observamos que aparecen estructuras oscilantes secundarias que se vuelven más evidentes a medida que incrementa  $M$  [ec. (3.24)]. Este patrón oscilante es consecuencia del término de interferencia *interpulso* y es máximo cuando las amplitudes son iguales (columna izquierda), es decir,  $F_1 = F_2$ , y disminuye a medida que la diferencia entre las amplitudes incrementa (columna derecha). En la primera, la interferencia da lugar a una probabilidad de emisión nula para ciertos valores de energía siguiendo la ec. (3.25). Esto se puede observar en la Fig. 3.2 (c), donde la posición del pico ATI correspondiente a la absorción de  $n = 3$  fotones tiene probabilidad nula.

Para corroborar el análisis del espectro realizado a través del SCM, comparamos el espectro del fotoelectrón obtenido mediante la CVA, ver Fig 3.2 (d). Podemos observar que, a pesar que el SCM sobreestima la probabilidad de emisión, ambos cálculos presentan patrones de interferencia muy similares. A partir de los resultados anteriores, podemos distinguir dos efectos diferentes sobre el espectro del fotoelectrón en función de la envolvente: (i) Se esperan diferentes picos ATI a diferentes posiciones de energía, los cuales dependen de la amplitud del campo. (ii) A diferentes amplitudes y retardo temporal entre los campos, se produce un patrón de interferencia que es máximo cuando los pulsos son idénticos. La primera conclusión se puede deducir fácilmente de las contribuciones individuales de  $|T_i|^2$  en la ec. (3.21), mientras que la segunda tiene su origen en el término de interferencia interpulso.

El análisis general que se lleva a cabo para pulsos con envolvente de dos escalones puede extenderse a un pulso de muchos escalones y, por lo tanto, se puede lograr un entendimiento más profundo de las estructuras del espectro. En este sentido, las amplitudes de ionización para pulsos con envolvente de muchos escalones puede también escribirse como la suma de las contribuciones individuales de cada parte del pulso, dando lugar a interferencias en la probabilidad de emisión. Cuando el número de términos que interfieren es alto, los picos asociados se superponen e identificar cada contribución se vuelve una tarea casi imposible.

Como ejemplo de un campo con envolvente de muchos escalones, en la Fig. 3.3 se muestra el espectro de energía del fotoelectrón que corresponde a un pulso simétrico con tres amplitudes de campo diferentes, dadas por  $0,8F_0$ ,  $0,9F_0$  y  $F_0$ . La envolvente se muestra en el recuadro superior de la Fig. 3.3 (a). Cada escalón contiene ocho ciclos,



**Figura 3.3:** Espectro del fotoelectrón ATI en la CVA para H(1s), con  $F_0 = \omega = 0,25$  u.a. y envolvente mostrada en el gráfico superior derecho. (a) Espectro de energía del electrón en la CVA para una envolvente de cinco escalones. (b) Espectro de energía del electrón para un escalón de amplitud  $F_0$  en línea roja punteada, para dos escalones de amplitud  $0,9F_0$  con un retardo temporal de 8 ciclos en línea azul y para dos escalones de amplitud  $0,8F_0$  con un retardo temporal de 24 ciclos en línea verde rellena.

con amplitud  $F_0 = 0,25$  u.a. y frecuencia  $\omega = 0,25$  u.a.. De esta manera, podemos considerar que el pulso original es una superposición de muchos pulsos cortos con diferentes amplitudes. Así, la probabilidad de emisión se puede expresar como la suma de cinco términos  $|T_i|^2$ , asociados a la probabilidad de ionización individual de cada pulso, y diez términos  $(T_i T_j^* + T_i^* T_j)$  con  $1 \leq i, j \leq 5$  y  $i \neq j$ , asociados a la interferencia entre ellos. Como se dijo antes, la principal contribución a los efectos de interferencia vienen dados por pares de escalones con igual amplitud, separados temporalmente. Por ello, consideramos al pulso como la suma de dos pares de pulsos (indicados en color verde y azul) más uno principal (en color rojo) como se muestra en el recuadro de la Fig 3.3. Evaluamos independientemente cada uno de estos pares de escalones y mostramos los resultados en la Fig 3.3 (b). Observamos que la posición de los picos ATI están dados por la ec. (3.20) con sus respectivas energías ponderomotriz, como se muestran en línea punteada.

Una comparación entre las Figs. 3.3 (a) y (b), muestra claramente que las contribuciones del término directo  $|T_3|^2$  y los términos de interferencia con retardo temporal entre  $T_1$  y  $T_5$ , y entre  $T_2$  y  $T_4$ , dominan los respectivos picos ATI. Estas interferencias tienen una representación analítica dada por la ec. (3.25). Además, aunque no lo mostramos aquí, hemos verificado que el pico ATI ubicado en el valor de energía 0,25 u.a. debido al escalón central más alto (contribución roja en el recuadro de la Fig 3.3 (b))

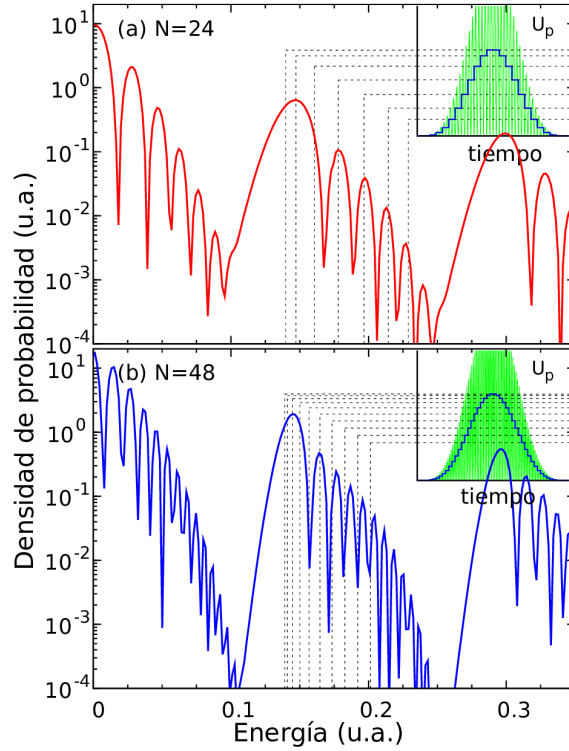
reproduce la forma asimétrica que adquiere en la Fig. 3.3(a) cuando un escalón vecino, de menor amplitud (contribución azul en el recuadro de la Fig 3.3 (b)), es también considerado.

Una importante consecuencia de la conclusión (i) es que los picos ATI tienen un ensanchamiento máximo directamente relacionado al esparcimiento de los valores de energía ponderomotriz. En el caso de la Fig. 3.3, esto significa que el pico ATI correspondiente a la absorción de fotones  $n = 4$ , está comprendido en un rango de energías del electrón desde 0,25 u.a. a 0,34 u.a., más allá del ancho de cada pico individual que es inversamente proporcional a la duración de cada escalón del pulso.

### 3.2.3. Pulsos con envolvente continua

A continuación, vamos a considerar un pulso asociado a un campo eléctrico con una envolvente suave más realista del tipo seno cuadrado [ec. (3.12c)]. Siguiendo el SMM los tiempos de ionización pueden calcularse a través de la ec. (3.15) como la intersección de las curvas azul y punteadas en la Fig. 3.1(e). A diferencia del pulso plano, los tiempos de ionización no están igualmente equiespaciados ya que la separación temporal de estas rendijas dependen de la energía del electrón y de la función envolvente en particular. Solamente los ciclos ópticos con suficiente intensidad contribuyen significativamente a la emisión electrónica para un dado momento  $\mathbf{k}$ . En otras palabras, a diferencia de la ec. (3.17) para un pulso plano, esta vez la acción acumulada  $\Delta S$  depende de cada ciclo en particular. La acción en la ec. (2.92), depende de la forma de la envolvente y del número de ciclos involucrados, y no depende linealmente del orden del ciclo. Por lo tanto, la interferencia interciclo no puede estar descrita por una función periódica simple como antes, y el espectro del electrón no exhibe un patrón de interferencia periódico homogéneo. De todos modos, es posible analizar cualitativamente el espectro del fotoelectrón en vista del análisis anterior.

La emisión electrónica es máxima cerca del centro del pulso ( $t \simeq \tau/2$ ), donde el campo adquiere su valor máximo. Por lo tanto, en el proceso atómico de absorción de  $n$  fotones, la energía cinética tendrá un límite inferior dado por la ec. (3.20). Los electrones emitidos por campos débiles en el pulso sentirán energías ponderomotrices más bajas y, por lo tanto, adquirirán energías cinéticas más altas con probabilidades de emisión decreciente. En otras palabras, el campo eléctrico débil al inicio y al final del pulso, realiza una contribución despreciable en el espectro del fotoelectrón en el máximo valor de la energía del electrón  $E_n = n\omega - I_P$ , para un  $n$  dado. A medida que la envolvente varía continuamente, la energía ponderomotriz depende fuertemente del ciclo ( $t_0, t_0 + 2\pi/\omega$ ) donde se tome el promedio temporal de la energía *quiver* y el tiempo  $t_0$ . De este modo, se puede esperar valores continuos de  $U_P$  entre 0 y  $U_P^0$ . Además, debido al efecto (ii) descrito anteriormente, se esperan algunas de las estructuras en



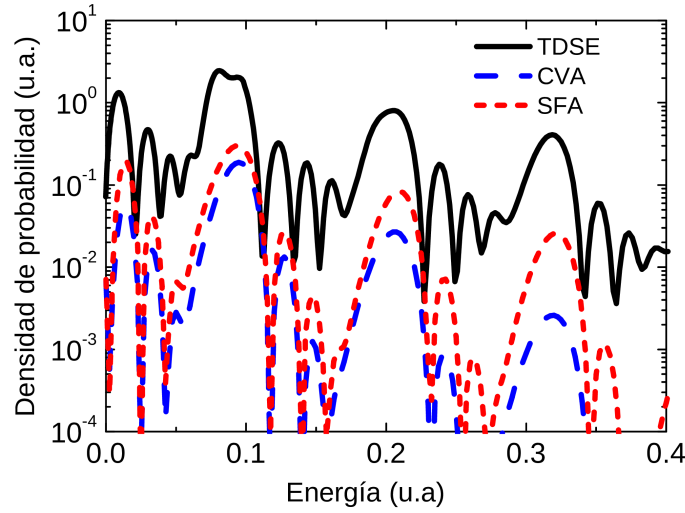
**Figura 3.4:** Espectro del fotoelectrón ATI en la CVA para H(1s) con envolvente  $\sin^2$ , amplitud  $F_0 = 0,1$  u.a., frecuencia  $\omega = 0,15$  u.a. y número de ciclos (a)  $N = 24$ , (b)  $N = 48$ . En el recuadro mostramos la energía de arrastre (en línea verde) y la energía ponderomotriz dependiente del ciclo (en línea azul) como función del tiempo.

el espectro de energía del fotoelectrón en el rango de energía  $(n\omega - I_P - U_P^0, n\omega - I_P)$ . Luego, el rango de energía de cada conjunto de picos para un mismo  $n$  es la energía ponderomotriz  $U_P^0$ , siempre que  $U_P^0 < \omega$ , y, por lo tanto, es independiente de la duración del pulso.<sup>1</sup>

Como ejemplo, mostramos en la Fig. 3.4, el espectro de energía dentro de la CVA producido por un pulso con envolvente seno cuadrado. Los parámetros del mismo son frecuencia  $\omega = 0,15$  u.a., amplitud  $F_0 = 0,10$  u.a., y número de ciclos  $N = 24$  (a) y 48 (b). Para ambas duraciones del pulso puede observarse que el pico ATI correspondiente a  $n = 5$  fotones absorbidos comienza para una energía del electrón  $5\omega - I_P - U_P^0 = 0,139$  u.a. (cuando el campo es máximo) y culmina en  $5\omega - I_P = 0,25$  u.a. (cuando el campo es nulo). En el recuadro de las Figs. mostramos los promedios en un ciclo de la energía cinética *quiver*, es decir, la energía ponderomotriz [ec. (3.10)]. Estos valores de  $U_P$  están asociados a las energías del electrón indicadas por líneas punteadas en el gráfico principal, las cuales eventualmente coinciden con las subestructuras en el espectro.

Estos resultados están corroborados por la solución *ab initio* de la ecuación de

<sup>1</sup> Esta independencia con la duración del pulso contrasta con el hecho de que en un pulso con envolvente plana, los picos ATI tienen un ancho dependiente con la misma. De hecho se van angostando a medida que se aumenta la duración del pulso, hasta convertirse en funciones deltas de Dirac de acuerdo a la conservación de energía, ver ec. (B.21).



**Figura 3.5:** Espectro de energía del fotoelectrón para H(1s) en la TDSE (línea negra), la CVA (línea azul), y la SFA (línea roja punteada), para una envolvente sinusoidal de amplitud  $F_0 = 0,07$  u.a., frecuencia  $\omega = 0,114$  u.a. y número de ciclos  $N = 16$ .

Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE) [49–51]. Los picos ATI secundarios también aparecen en los cálculos de la TDSE [ver Fig. 3.5]. Las posiciones exactas de los picos no coinciden exactamente con los obtenidos en los cálculos de la CVA y SFA, los cuales parecen estar ligeramente desplazados hacia altas energías del electrón. La comparación entre los espectros de energía de la CVA y SFA indica que el efecto del potencial de Coulomb de largo alcance, el cual se toma en cuenta aproximadamente en la CVA y es despreciado en la SFA, no produce un efecto significativo en la formación de subestructuras por la rápida variación de la energía ponderomotriz [47].

### 3.3. Conclusiones

La energía cinética *quiver* adquirida por un electrón en un campo láser es una cantidad dependiente del tiempo que produce una fuerte variación temporal en la energía cinética del electrón. Para una interpretación simple del espectro del electrón emitido, es usual introducir la energía ponderomotriz como un promedio temporal de la energía *quiver* y utilizarla en la ecuación de la conservación de energía dada por la ec. (1.3). Aquí mostramos que esta aproximación es razonable para pulsos planos, pero que no es precisa para envolventes del pulso que cambian ciclo a ciclo.

Consideramos pulsos de escalones múltiples, con envolventes constantes en diferentes regiones del dominio temporal, y mostramos que cada escalón de envolvente con su correspondiente energía ponderomotriz  $U_P$  da lugar a un pico ATI en el espectro de energía del fotoelectrón cuya posición queda determinada por la ec. (3.20). Encontramos, además, que las amplitudes de emisión del electrón producida por los escalones

interfieren entre sí, originando patrones de interferencia adicional. Derivamos una expresión analítica de estas interferencias para una envolvente con escalones múltiples. En particular, para una envolvente de dos escalones discutimos sobre cómo el espectro de energía del fotoelectrón varía en función de la amplitud de campo y de la separación temporal entre los escalones. Para pulsos con envolventes continuas del tipo seno cuadrado, observamos que tanto la amplitud del campo eléctrico como la energía ponderomotriz varían a lo largo de todo el pulso.

En conclusión, encontramos que el espectro de energía del fotoelectrón está caracterizado por los bien conocidos picos ATI, cada uno con un ancho asociado a los distintos valores que toma la energía ponderomotriz con la envolvente del pulso y, como consecuencia, la forma y posición de estos picos sigue la forma de la envolvente del pulso. Además, demostramos que cada pico ATI presenta un patrón oscilante que resulta de la interferencia *interpulso* producida por las distintas amplitudes del campo y el retardo temporal entre ellas.

# Capítulo 4

## Fotoemisión asistida por láser (LAPE)

En este capítulo analizamos la fotoemisión asistida por láser (LAPE) distinguiendo dos regímenes asociados a la ionización multifotónica de dos colores (XUV+IR) dependiendo de la superposición temporal de ambos pulsos. En la transición de un régimen a otro, extendemos el modelo semiclásico (SCM) unidimensional desarrollado para procesos ATI hacia el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo en procesos LAPE .

### 4.1. Regímenes en la fotoemisión asistida por láser

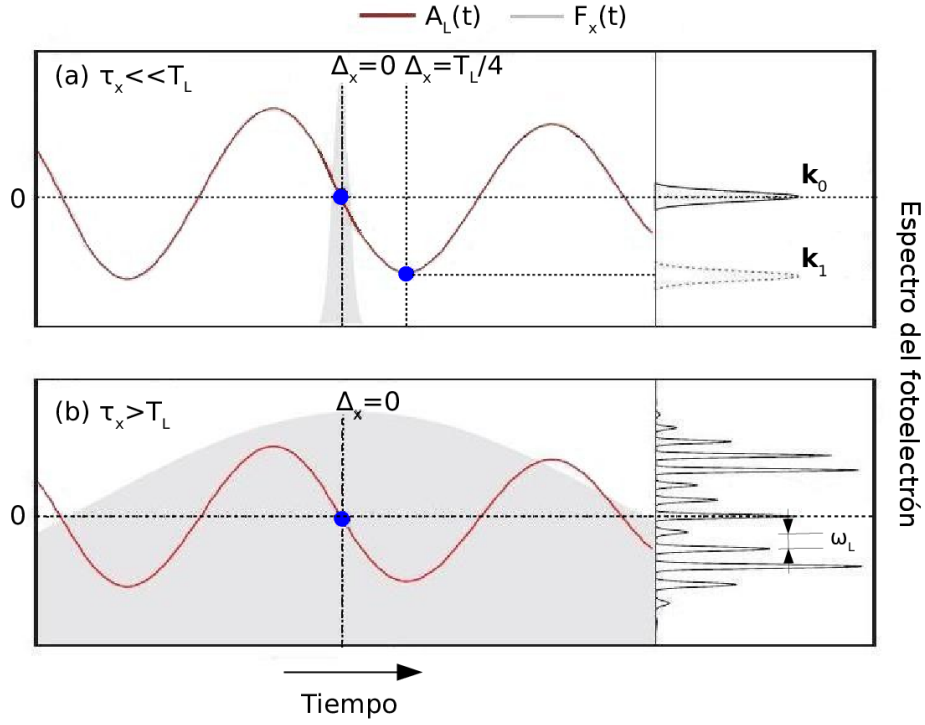
Como se mencionó en el primer capítulo, la fotoemisión asistida por láser LAPE (Laser Assisted PhotoEmission) consiste en la fotoionización por un pulso con frecuencia alta, típicamente en el extremo ultravioleta (XUV), en presencia de un campo láser con frecuencia en el infrarrojo (IR) o infrarrojo cercano (NIR). En este tipo de procesos el campo de radiación XUV+IR se puede escribir como una combinación lineal de los campos individuales de acuerdo a la ec. (2.97), es decir,

$$\mathbf{F}(t) = \mathbf{F}_X(t) + \mathbf{F}_L(t), \quad (4.1)$$

donde el pulso XUV ioniza el átomo mientras que el campo IR asiste al electrón ya emitido. Cada uno de estos campos se escribe como en la ec. (2.28) con parámetros de frecuencia angular  $\omega_i$ , amplitud  $F_{0i}$ , duración  $\tau_i$  y polarización  $\epsilon_i$  siendo  $i = X, L$  correspondiente al pulso XUV e IR, respectivamente.. En un proceso LAPE es importante considerar, además, el retardo temporal entre los pulsos  $\Delta_X$ , es decir, en qué momento comienza a actuar el pulso XUV respecto del campo IR.

En la Fig. 4.1 mostramos esquemáticamente dos posibles configuraciones de los campos y el espectro electrónico esperado. Dependiendo de la duración del pulso XUV (en gris) respecto de un período del IR (en rojo) se pueden distinguir dos regímenes:

*streaking* y *sideband* en las Figs. 4.1 (a) y (b), respectivamente.



**Figura 4.1:** Esquema de los pulsos XUV (gris) e IR (rojo) en proceso LAPE con parámetros de los pulsos XUV e IR dados por duración  $\tau_X$ , retardo temporal  $\Delta_X$  y período  $T_L$ . (a) Streaking:  $\tau_X \ll T_L$ , el pulso XUV con retardo temporal  $\Delta_X = 0$  ioniza en un instante  $t_0$ . Si tuviera retardo temporal  $\Delta_X = T_L/4$  lo haría a un instante  $t_1$ . (b) Sideband:  $\tau_X > T_L$  el pulso XUV con retardo temporal  $\Delta_X = 0$  tiene una duración que abarca varios ciclos IR. En el lado derecho se muestra un esquema del espectro de energía del fotoelectrón correspondiente a cada una de las situaciones donde  $\mathbf{k}_0 = \mathbf{v}_0 - \mathbf{A}_L(t_0)$  y  $\mathbf{k}_1 = \mathbf{v}_0 - \mathbf{A}_L(t_1)$ , respectivamente. Extraído de [52].

#### 4.1.1. Streaking

En la Fig. 4.1(a) se muestra el esquema de la configuración de los campos cuando la duración del pulso XUV es menor que el período del IR, el cual marca el régimen de *streaking*. Aquí la ionización debida a la absorción de un fotón  $\omega_X$  se produce en un instante  $t_0$  para un pulso XUV con retardo temporal  $\Delta_X = 0$ , luego el electrón liberado es gobernado únicamente por el campo láser IR siguiendo las ecuaciones de movimiento, ec. (2.29), que en unidades atómicas se puede escribir como

$$\mathbf{v}(t) = [\mathbf{A}_L(t) - \mathbf{A}_L(t_0)] + \mathbf{v}_0 \quad (4.2)$$

donde  $\mathbf{v}_0$  es la velocidad inicial que adquiere el electrón en el instante  $t_0$  en el que es emitido<sup>1</sup>. Cuando el tiempo es muy grande, el campo IR se apaga  $\mathbf{A}_L(t \rightarrow \infty) = 0$  y  $\mathbf{v}(t \rightarrow \infty) = \mathbf{k}$  es el momento del electrón que se mide en el detector.

<sup>1</sup> La dirección de emisión está determinada por el estado inicial del electrón y el vector de polarización del campo XUV.



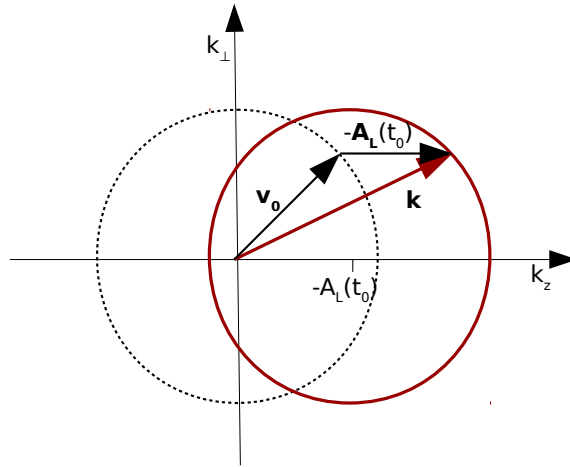
De acuerdo a la ecuación de conservación de energía dada por (1.1) para la absorción de un fotón XUV, tenemos que  $v_0^2/2 = \omega_X - I_P$ . Reemplazando esto en la ecuación anterior se llega a:

$$\frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_0)]^2}{2} = \omega_X - I_P. \quad (4.3)$$

Considerando que el láser está polarizado en  $z$  y es modelado por  $\mathbf{A}_L(t) = A_L(t)\mathbf{e}_z$ , la velocidad del fotoelectrón en coordenadas cilíndricas se puede escribir como  $\mathbf{k} = k_z\mathbf{e}_z + k_\perp\mathbf{e}_\perp$ . Luego la ec. (4.3) nos queda de la forma

$$k_\perp^2 + (k_z + A_L(t_0))^2 = v_0^2 \quad (4.4)$$

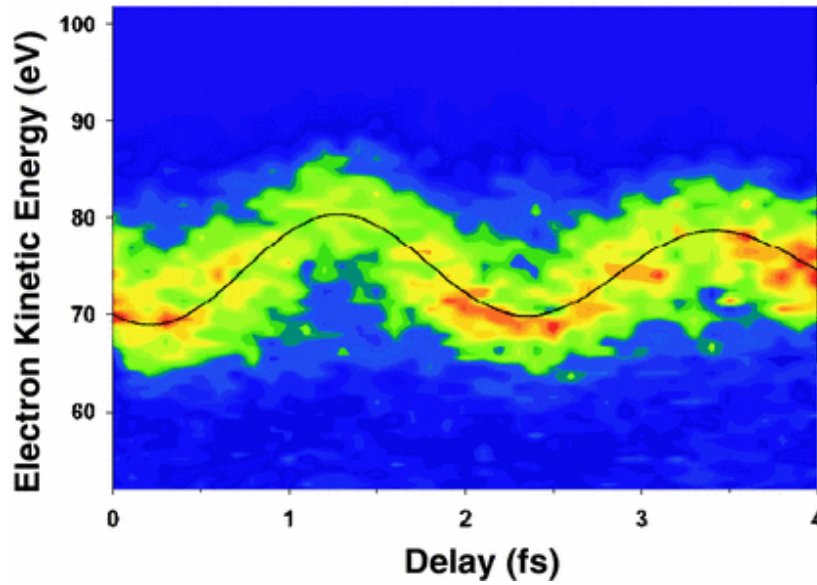
que representa una circunferencia en el espacio de velocidades de radio  $v_0$  centrada en  $-A_L(t_0)\mathbf{e}_z$  [ver Fig. 4.2]. Si al momento de la ionización el campo láser se anula, es decir,  $\mathbf{A}_L(t_0) = 0$ , la circunferencia está centrada en el origen de coordenadas y corresponde a una distribución isotrópica de fotoelectrones con igual velocidad (indicada en línea punteada). En cambio si  $\mathbf{A}_L(t_0) \neq 0$ , la circunferencia se desplaza en la dirección de polarización del láser, cuyo corrimiento viene dado por  $\mathbf{k} - \mathbf{v}_0 = -\mathbf{A}_L(t_0)$  (curva roja).



**Figura 4.2:** Esquema para la distribución de velocidades del fotoelectrón para el caso de *streaking*. Una distribución inicialmente isotrópica (indicada en línea punteada) de fotoelectrones con la misma velocidad  $\mathbf{v}_0$  se modifica mediante la adición del potencial vector del campo láser en el instante  $t_0$  en que el electrón es emitido, cuyo desplazamiento viene dado por  $\mathbf{k} - \mathbf{v}_0 = -\mathbf{A}_L(t_0)$ .

Variando el instante  $t_0$  en el que se produce la ionización atómica, el cual depende de  $\Delta_X$ , se puede obtener el espectro del fotoelectrón en función del retardo temporal entre los pulsos XUV e IR. Por ejemplo, en la Figura 4.1 (a) se indica que si el tiempo de ionización hubiese sido  $t_1$ , entonces el espectro de energía del electrón estaría desplazado y centrado en  $\mathbf{k} = \mathbf{v}_0 - \mathbf{A}_L(t_1)$ . De esta manera, considerando  $\mathbf{k} - \mathbf{v}_0$  para cada valor de retardo  $\Delta_X$ , se obtiene en el espectro de energía un corrimiento que mapea directamente

el potencial vector del campo láser. Éste es el principio de funcionamiento de la *streak camera* como técnica de espectroscopía ultrarrápida que permite, midiendo la energía cinética del electrón, reconstruir las oscilaciones de pocos femtosegundos del potencial vector del láser IR. Por ejemplo, en la Fig. 4.3 se muestra el espectro electrónico obtenido experimentalmente utilizando esta técnica para la fotoionización de átomos de Neón asistida por láser. Se observa que dependiendo del retardo entre ambos pulsos el espectro presenta un máximo a distintos valores de energía, reproduciendo la oscilación del campo láser con resolución de pocos femtosegundos.



**Figura 4.3:** Resultado experimental para la ionización de átomos de neón producida por una banda ancha de 8 eV centrada en la energía del fotón XUV de 93 eV y en presencia de un campo de luz visible. Esto da lugar a fotoelectrones  $\text{Ne}2p$  con una energía cinética de aproximadamente de  $72 \pm 4$  eV. La diferencia  $\mathbf{k} - \mathbf{v}_0 = -\mathbf{A}_L(t_0)$  muestra que la energía cinética del electrón mapea directamente el potencial vector del campo láser [53].

#### 4.1.2. Sideband

Para duraciones del pulso XUV que involucren varios ciclos del láser,  $\tau_X > T_L$ , el electrón tiene tiempo de interactuar con el láser dando lugar al intercambio (absorción y emisión) de fotones IR, ver Figura 4.1 (b). Como consecuencia, el espectro de energía del fotoelectrón muestra un pico principal debido a la absorción de un fotón XUV, acompañado de picos laterales o bandas laterales de amplitud variable equiespaciados entre sí por  $\omega_L$ . La conservación de energía en este caso establece que la posición de estos picos corresponde a  $E_n = \omega_X - I_P - U_P \pm n\omega_L$  donde  $n$  es un número entero de fotones del láser absorbidos (+) o emitidos (−) y  $U_P$  es la energía poderomotriz asociada a la contribución del campo IR ya que la del XUV resulta generalmente muy pequeña. Más adelante profundizaremos este análisis.

En cada uno de estos regímenes, *streaking* y *sideband*, la descripción del electrón se hace generalmente de manera distinta. Mientras que en el primer caso, la imagen clásica del electrón permite su interpretación como una partícula, en el segundo régimen, debido a la larga duración del XUV la formación del paquete de onda electrónico no es instantánea y por lo tanto, puede considerarse al electrón como una onda [54]. Sin embargo, en la situación intermedia en la que duración del pulso XUV es comparable al período del láser, todavía no se ha logrado una interpretación del proceso que dé cuenta de esta dualidad onda-partícula.

Por otra parte, queremos mencionar que el análisis del espectro electrónico en procesos de fotoemisión asistidos por láser puede proporcionar información sobre la duración del pulso de alta frecuencia, la intensidad del láser de baja frecuencia y el retardo temporal entre los dos pulsos. Y que además de brindar información de la dinámica electrónica dependiendo si la duración del pulso XUV es muy larga o muy corta respecto del láser, pone en evidencia la dualidad onda-partícula del electrón. Por esta razón en esta tesis, trabajamos en el régimen intermedio presentando un modelo que considere trayectorias clásicas del electrón para construir el espectro electrónico considerando la fase adquirida por cada una de ellas, es decir, que ofrece la posibilidad de establecer una conexión entre tiempos de emisión y la energía cinética del electrón.

## 4.2. Modelo semiclásico en la fotoemisión asistida por láser

Para cuantificar la emisión de electrones se introduce la probabilidad de ionización que se calcula como el módulo cuadrado de la matriz de transición  $T_{if}$  [ver ec. (2.88)]. Tal como desarrollamos en la sección 2.4, dentro de la SFA,  $T_{if}$  está dada por la ec. (2.96) con el campo total dado por la ec. (4.1) para procesos LAPE. De esta manera

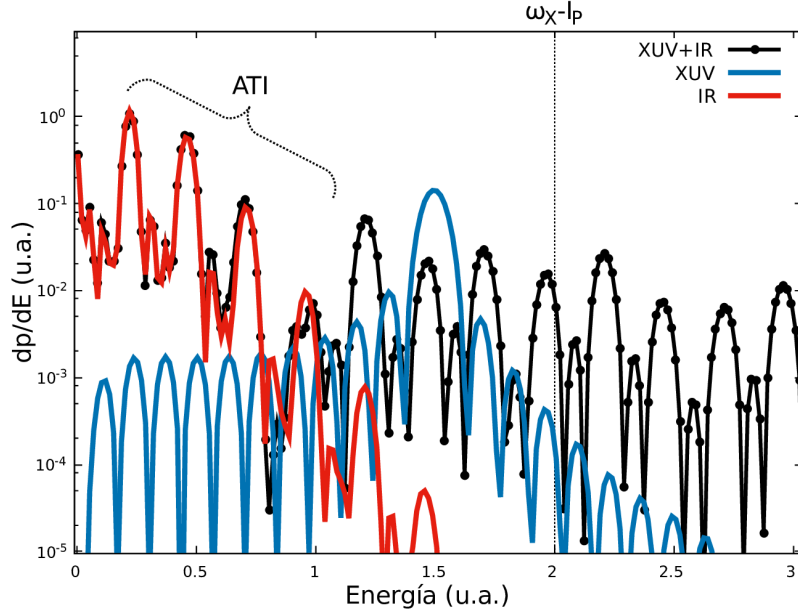
$$\begin{aligned} T_{if}^{SFA-} &= -i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{iS(t)} [\mathbf{F}_X(t) + \mathbf{F}_L(t)] \cdot \mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) \\ &= -i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{iS(t)} \mathbf{F}_X(t) \cdot \mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) - i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{iS(t)} \mathbf{F}_L(t) \cdot \mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)), \end{aligned} \quad (4.5)$$

donde la fase  $S(t)$  está definida en la ec. (2.92) y el potencial vector  $\mathbf{A}(t)$  corresponde a la suma por separado  $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_X(t) + \mathbf{A}_L(t)$ . Dado que la fase  $S(t)$  y el elemento dipolar dependen del potencial vector total  $\mathbf{A}(t)$ , la matriz de transición no se escribe como una suma de contribuciones de cada pulso por separado (la ionización por superposición de pulsos es claramente no lineal). Sin embargo, debido a que la amplitud del potencial vector se puede estimar como  $A_{0i} \sim F_{0i}/\omega_i$  (con  $i = L$  ó  $X$ ) resulta que el potencial

vector del IR típicamente domina frente al del XUV, es decir,  $A_{0L} \gg A_{0X}$  [55]. Luego

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_L(t) + \underbrace{\mathbf{A}_X(t)}_{\ll 1} \simeq \mathbf{A}_L(t). \quad (4.6)$$

Bajo esta suposición, el segundo término de la ec. (4.5) corresponde al de ionización debido al IR solamente, mientras que el primero da cuenta de la superposición de ambos campos. Esto se puede observar en la Fig. 4.4, donde se muestra el espectro de energía dentro de la SFA para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado  $1s$  en la dirección de polarización de los campos. En ella se muestra las probabilidades de ionización correspondientes al pulso XUV únicamente (en azul), al campo láser IR (en rojo) y al pulso superposición de ambos XUV+IR (en negro). Observamos que el segundo término de la ec. (4.5) describe los picos ATI asociados a la absorción de fotones IR y es el que da la mayor contribución (en rojo) al espectro total hasta un valor de energía de 1 u.a.. A partir de ese valor de energía, el primer término es el que domina en el espectro, siendo el responsable de las estructuras de sideband que están centradas alrededor de  $E \simeq \omega_X - I_P$ , posición en la cual el espectro por absorción de un fotón XUV (en azul) tiene su máximo<sup>2</sup>.



**Figura 4.4:** Espectro de energía del electrón para ionización del átomo de Hidrógeno desde su estado fundamental  $1s$  considerando emisión paralela a la dirección de polarización de los campos XUV e IR y dentro de la aproximación de campo intenso (SFA). En línea roja (azul) se muestra la ionización producida por el pulso IR (XUV) solamente, mientras que en línea negra de puntos se muestra la ionización producida por el XUV+ IR. Los parámetros de los XUV e IR están dados por las frecuencias  $\omega_X = 2,5$  u.a. y  $\omega_L = 0,25$  u.a., amplitudes  $F_{X0} = 0,05$  y  $F_{L0} = 0,1$  u.a., y duraciones  $\tau_X = 3T_L$  y  $\tau_L = 5T_L$ , respectivamente.

<sup>2</sup>La posición del máximo viene dada por la conservación de energía de la ec. (1.3), por ejemplo, para  $N = 1$ , con  $U_P \rightarrow 0$  para el caso XUV, puesto que  $A_{0X} \sim F_{0X}/\omega_X \ll 1$  en la ec. (4.6).

Dependiendo del valor de la frecuencia del XUV, las contribuciones de cada término de la ec. (4.5) pueden estar bien separadas en el dominio de energía. Mientras que la ionización por un fotón del XUV (primer término) da lugar a electrones con energía cinética final cercana a  $E \simeq \omega_X - I_P$ , la ionización por el campo láser IR (segundo término) da lugar a electrones con energía cinética mucho menor que dos veces su energía ponderomotriz  $E \lesssim 2U_P$ . Esta energía corresponde a la energía cinética de deriva del electrón dada por la ec. (2.36). Por lo tanto, la contribución de la ionización del IR [segundo término en la ec. (4.5)] es despreciable en la zona del espectro cercana a  $E \simeq \omega_X - I_P$  siempre y cuando  $U_P \ll \omega_X - I_P$ .

Además, vamos a suponer que el pulso XUV está dado por la ec. (2.28) y se escribe como  $\mathbf{F}_X(t) = F_{X0}(t) \cos(\omega_X t) \boldsymbol{\epsilon}_X$ , donde  $F_{X0}(t)$  es una función envolvente que varía lentamente y distinta de cero en el intervalo de duración  $\tau_X$ . En este caso, reescribiendo  $\cos(\omega_X t) = [\exp(i\omega_X t) + \exp(-i\omega_X t)]/2$ , la amplitud de transición puede escribirse como la contribución de dos términos,

$$T_{if}^{SFA-} = T_{if}^{(+)} + T_{if}^{(-)}, \quad (4.7)$$

donde  $T_{if}^{(+)}$  y  $T_{if}^{(-)}$  corresponden a la absorción y emisión de un fotón del XUV, respectivamente. Podemos, entonces, descartar el término de emisión  $T_{if}^{(-)}$  puesto que cae en un dominio de energía cercano a  $E \simeq -\omega_X - I_P$  que no está en el continuo. Finalmente, podemos reescribir la matriz de transición dada en la ec. (4.5) como

$$T_{if}^{SFA-} \simeq -\frac{i}{2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \, d_X(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t)) F_{X0}(t) \exp[i\mathcal{S}(t)], \quad (4.8)$$

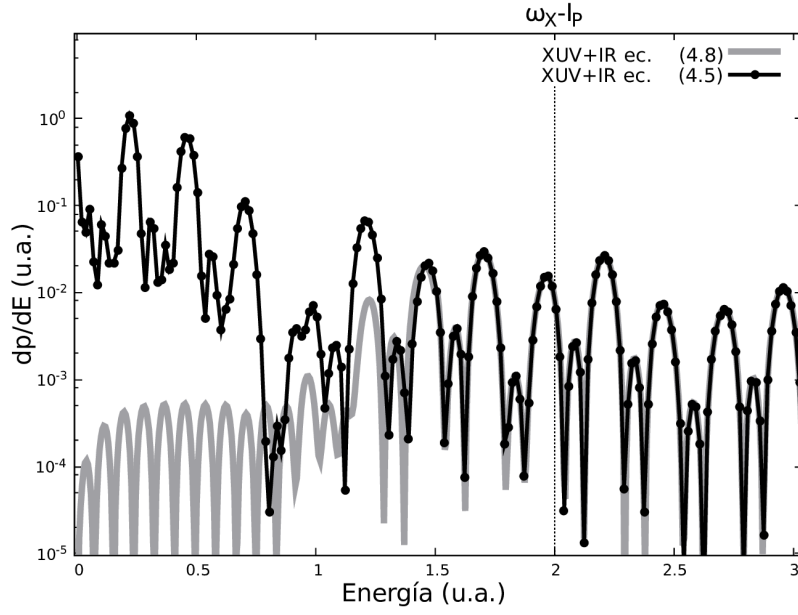
donde  $d_X(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L) = \mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L) \cdot \boldsymbol{\epsilon}_X$  y

$$\mathcal{S}(t) = - \int_t^\infty dt' \left[ \frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t')]^2}{2} + I_P - \omega_X \right] \quad (4.9)$$

es la acción generalizada para el caso de fotoemisión asistida por láser para absorción de un fotón del XUV que difiere de la definida en la ec. (2.92) principalmente por la presencia del término  $\omega_X$  dentro de la integral.

Como ejemplo en la Fig. 4.5 comparamos el espectro del fotoelectrón dado por la ec. (4.5) y su aproximación en el rango de interés dada por la ec. (4.8). En ella se muestra que para valores de energía del fotoelectrón cercanas a  $E \simeq \omega_X - I_P$ , la aproximación utilizada en la ec. (4.8) describe con muy buena precisión el espectro original. A bajas energías la discrepancia es importante ya que el término dominante es por la ionización del IR (curva roja en la Fig. 4.4).

A continuación extendemos el SCM desarrollado por Arbó *et al* [43, 44] para ioni-



**Figura 4.5:** Espectro de energía del electrón para ionización del átomo de Hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  considerando emisión paralela a la dirección de polarización de los campos XUV e IR, dentro de la aproximación de campo intenso (SFA) utilizando las ecs (4.5) y (4.8). Los parámetros de los XUV e IR utilizados son los mismos que en la Fig. 4.4.

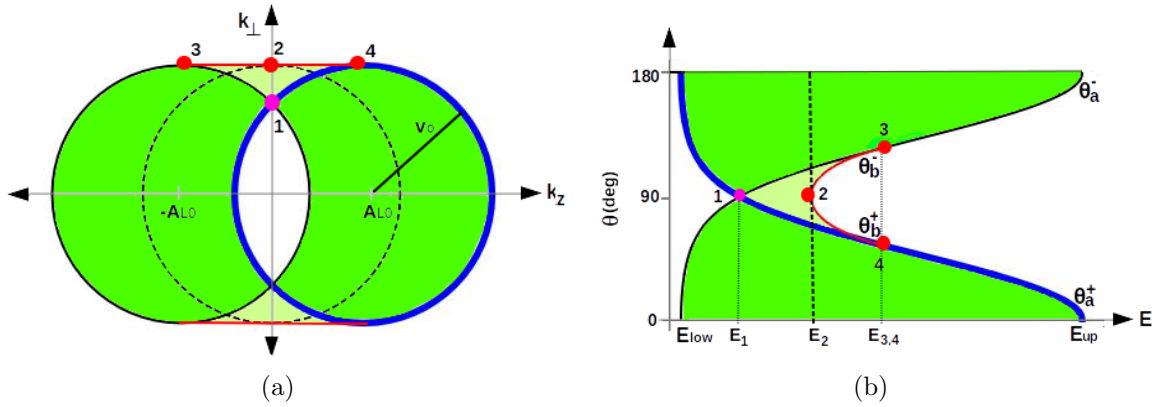
zación atómica por un pulso IR hacia ionización atómica por XUV+IR en la transición al régimen de sideband. Vamos a restringir el análisis al caso donde el pulso XUV tiene una duración igual o más larga que un período del campo láser IR,  $\tau_X \gtrsim T_L$ . Estudiamos la ionización atómica del átomo de hidrógeno, considerando los campos XUV e IR linealmente polarizados en la misma dirección  $\mathbf{e}_z$ .

De acuerdo a lo desarrollado en el Apéndice B el modelo semiclásico (SCM) consiste en resolver la integral en el tiempo de la ec. (4.8) por medio de la aproximación de punto silla [39–42]. De esta forma, la probabilidad de transición puede escribirse como una superposición coherente de trayectorias clásicas del electrón con el mismo momento final  $\mathbf{k}$ , a través de la ec. (B.5) donde los tiempos de ionización  $t_s$ , que satisfacen  $d\mathcal{S}(t_s)/dt = 0$ , están dados en este caso, por

$$\frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s)]^2}{2} = \omega_X - I_P, \quad (4.10)$$

de donde se interpreta que el electrón es emitido al continuo con velocidad distinta de cero en contraste con el SMM para procesos ATI [ver ec. (3.15)]. La ec. (4.10) es equivalente a la ecuación (4.3) para el caso de *streaking* si se considera que a cada tiempo  $t_s$  que satisface (4.10) se produce ionización instantánea de un pulso XUV infinitesimalmente corto. Finalmente, se suman todas las trayectorias que se originaron en el intervalo temporal que dura el pulso XUV.

Teniendo en cuenta la simetría cilíndrica que presenta el sistema respecto de la dirección de incidencia de los campos, vamos a trabajar en coordenadas cilíndricas. De



**Figura 4.6:** a) Esquema de la región clásicamente permitida en el espacio de momentos  $k_z \mathbf{e}_z + k_\perp \mathbf{e}_\perp$ . El círculo en línea de puntos, de radio  $v_0$ , centrado en el origen, representa la principal línea de emisión (debido a la ionización por un XUV sin campo láser). A medida que el potencial vector del láser oscila, el círculo se desplaza horizontalmente en  $-A_L(t)$  con amplitud  $A_{L0}$ . En la región *tipo paralela* (color verde), hay dos trayectorias clásicas del electrón que contribuyen a la distribución de probabilidad. En la región *tipo perpendicular* (en color verde claro), el número de trayectorias que contribuyen es cuatro. El área blanca representa la región clásicamente prohibida. b) Lo mismo que lo mostrado en a), pero en el dominio energía-ángulo.

esta manera, el momento final del fotoelectrón se escribe como

$$\mathbf{k} = k_z \mathbf{e}_z + k_\perp \mathbf{e}_\perp \quad (4.11)$$

y la ecuación (4.10) nos queda de la forma

$$(k_z + A_L(t_s))^2 + k_\perp^2 = v_0^2, \quad (4.12)$$

la cual, como se comentó anteriormente, representa una circunferencia en el espacio de momentos con centro en  $-A_L(t_s) \mathbf{e}_z$  y radio  $v_0$ , cuya posición central oscila con el potencial vector del láser dependiente del tiempo. En lo que sigue modelamos el potencial vector como

$$\mathbf{A}_L(t) = A_{L0} \sin(\omega_L t) \mathbf{e}_z \quad (4.13)$$

y por lo tanto sus amplitudes máximas y mínimas corresponden a  $\pm A_{L0}$ . En la Figura 4.6 (a) se muestra el área que determina la ec. (4.12) durante todo un ciclo de oscilación. A tiempo cero la circunferencia (en línea punteada) se centra en el origen y comienza a moverse hacia la izquierda a medida que aumenta el potencial vector. Cuando el potencial vector alcanza su máxima amplitud  $A_{L0}$ , la circunferencia se sitúa a la izquierda con el centro en  $-A_{L0} \mathbf{e}_z$  y luego se mueve hacia la derecha. En un período del potencial vector del láser la circunferencia regresa al origen. El área sombreada en la figura indica los valores de momento  $\mathbf{k}$  que fueron alcanzados por la circunferencia en algún momento durante un ciclo. De esta manera, los valores de  $\mathbf{k}$  clásicamente permitidos son todos los puntos del área sombreada para los cuales existe un tiempo  $t_s$  que verifi-



ca la ec. (4.12). Fuera de este dominio clásico los tiempos de ionización son complejos dando lugar a trayectorias no clásicas con factores que decaen exponencialmente y por lo tanto son de menor relevancia en comparación con los reales.

Por otra parte, en la Fig. 4.6 (a) podemos distinguir dos regiones clásicamente permitidas para las cuales hay dos momentos o cuatro, en los que la circunferencia atraviesa dicha zona. Llamaremos *tipo paralela* y *tipo perpendicular* (delimitada por los puntos 1 a 4) a las áreas que se indican en color verde oscuro y verde claro, respectivamente. Como veremos en el capítulo siguiente, estos nombres provienen de estudiar el caso de emisión en la dirección paralela al vector de polarización de los láseres ( $k_{\perp} = 0$ ) o bien perpendicular ( $k_z = 0$ ) [56, 57].

Estamos interesados en obtener el espectro del fotoelectrón para procesos LAPE en función de la energía y ángulo de emisión. Por ello, es conveniente representar las regiones definidas anteriormente en el dominio energía-ángulo, es decir, realizar la transformación  $(k_z, k_{\perp}) \rightarrow (E, \theta)$ , considerando que  $E = (k_z^2 + k_{\perp}^2)/2$  y  $\tan \theta = k_{\perp}/k_z$ . Esto se muestra en la Fig. 4.6 (b) donde las curvas que limitan las regiones clásicamente permitidas están definidas por

$$\theta_a^{\pm}(E) = \arccos\left(\pm \frac{E + A_{L0}^2/2 - v_0^2/2}{\sqrt{2E}A_{L0}}\right), \quad (4.14)$$

$$\theta_b^{\pm}(E) = \arcsin\left(\pm \frac{v_0}{\sqrt{2E}}\right) + \frac{(1 \mp 1)\pi}{2}, \quad (4.15)$$

que en el espacio de momentos corresponden a los círculos en línea azul, línea negra, y los puntos 3-4 a la curva en línea roja.

A partir de las ecs. (4.14) y (4.15) podemos obtener los límites clásicos, superior e inferior, para la energía del electrón, los cuales son dependientes del ángulo de emisión  $\theta$ . En particular, para los casos de emisión paralela y perpendicular están dados por las ecuaciones [56, 57]

$$E_{\text{low,up}} = (v_0 \mp A_{L0})^2/2 \quad \text{para} \quad \theta = 0^\circ, \quad (4.16)$$

$$E_1 = (v_0^2 - A_{L0}^2)/2 \quad \text{y} \quad E_2 = v_0^2/2 \quad \text{para} \quad \theta = 90^\circ. \quad (4.17)$$

Volviendo a la ec. (4.12) los tiempos de ionización  $t_s$  que la satisfacen se obtienen como intersección de las líneas horizontales:

$$\beta_{\pm}(\mathbf{k}) \equiv -k_z \pm \sqrt{v_0^2 - k_{\perp}^2} \quad (4.18)$$

con el potencial vector del láser  $A_L(t)$ .

En la Fig. 4.7, representamos esquemáticamente cómo se determinan los tiempos de ionización  $t_s$  para un momento final fijo  $\mathbf{k}$ , con  $k_z > 0$  (para el caso contrario,  $k_z < 0$ ,



puede deducirse de forma similar). También se pueden distinguir dos situaciones diferentes dependiendo de si son (o no) soluciones de la rama negativa de la raíz cuadrada. Si  $-k_z - \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2} = \beta_-(\mathbf{k}) < -A_{L0}$ , la rama negativa (línea verde inferior) nunca alcanza ningún valor del potencial vector  $A_L(t)$  (en rojo) y por lo tanto existen sólo dos tiempos de ionización por ciclo óptico  $j$  dados por  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$ . Esta situación se esquematiza en la Fig. 4.7 (a) para un sólo ciclo del potencial vector del láser ( $j = 1$ ) donde  $A_L(t)$  y  $\beta_-(\mathbf{k})$  se identifican en línea de color rojo y verde, respectivamente, y se cumple para valores del momento del fotoelectrón  $\mathbf{k}$  contenidos en la región *tipo paralela*. Bajo esta condición, cuando  $\beta_+(\mathbf{k}) > 0$ , los tiempos de emisión permanecen en la primera mitad del ciclo óptico. A medida que  $\beta_+(\mathbf{k}) \rightarrow 0$ , el tiempo de emisión  $t^{(j,1)}$  se dirige hasta el comienzo del ciclo del láser, mientras que el tiempo de emisión posterior  $t^{(j,2)}$  se dirige hacia la mitad del ciclo [ver Fig. 4.7 (a)]. Finalmente, cuando  $\beta_+(\mathbf{k}) < 0$ , los tiempos de ionización se mueven al segundo semiciclo óptico del láser. Esta transición produce una discontinuidad en el espectro del fotoelectrón que se analiza más adelante. Por otra parte, en la Fig. 4.7 (b) se muestra cuando la rama negativa de la raíz cuadrada, es decir,  $\beta_-(\mathbf{k}) > -A_{L0}$  (en línea gris), intersecta a  $A_L(t)$  (en línea roja) en un período del ciclo óptico ( $j = 1$ ). Esto da como resultado los tiempos  $t^{(j,3)}$  y  $t^{(j,4)}$  y, por lo tanto, hay cuatro tiempos de ionización por ciclo óptico. Los valores de  $\mathbf{k}$  que satisfacen esta condición pertenecen a la región *tipo perpendicular*. De esta manera los tiempos  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$ , pueden estar en la primera o segunda mitad del ciclo  $j$ , dependiendo del valor del momento  $\mathbf{k}$ , mientras que  $t^{(j,3)}$  y  $t^{(j,4)}$  están siempre en la segunda mitad.

Los tiempos de ionización correspondientes a diferentes ciclos se relacionan al primero a través de

$$t^{(j,\alpha)} = t^{(1,\alpha)} + (2\pi/\omega_L)(j - 1), \quad (4.19)$$

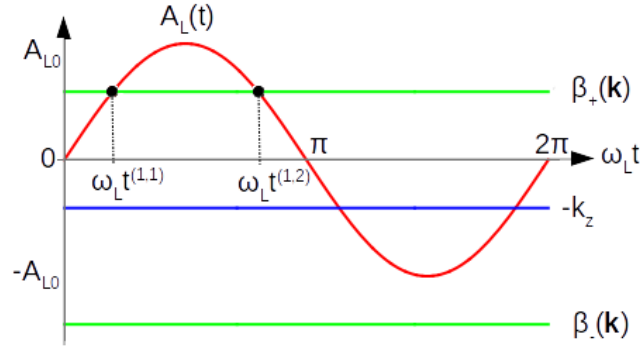
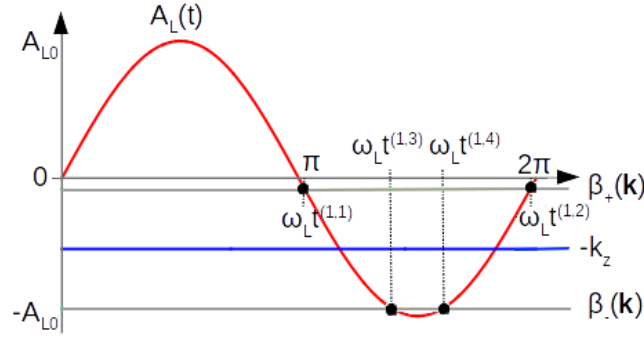
donde  $j = 1, 2, \dots, N$ , indica el  $j$ -ésimo ciclo óptico,  $N$  es el número total del ciclos del láser y  $\alpha = 1, 2, 3$  y  $4$ , corresponden a los cuatros tiempos de ionización por ciclo óptico, descriptos anteriormente. Las soluciones de la ec. (4.12) con  $\beta_+(\mathbf{k}) \geq 0$ , caen en el primer semiciclo:

$$t^{(1,1)} = \frac{1}{\omega_L} \sin^{-1} \left| \frac{\beta_+(\mathbf{k})}{A_{L0}} \right| \quad \text{y} \quad t^{(1,2)} = \frac{\pi}{\omega_L} - t^{(1,1)}. \quad (4.20)$$

Mientras que si  $\beta_+(\mathbf{k}) < 0$ , caen en el segundo semiciclo:

$$t^{(1,1)} = \frac{\pi}{\omega_L} + \frac{1}{\omega_L} \sin^{-1} \left| \frac{\beta_+(\mathbf{k})}{A_{L0}} \right| \quad \text{y} \quad t^{(1,2)} = \frac{3\pi}{\omega_L} - t^{(1,1)}. \quad (4.21)$$

El 3<sup>er</sup> y 4<sup>to</sup> tiempo de ionización pertenecientes a la región *tipo perpendicular*, están

(a) Tiempos de ionización para la región *tipo paralela*(b) Tiempos de ionización para la región *tipo perpendicular*

**Figura 4.7:** Tiempos de emisión en el primer ciclo de oscilación del láser IR, que son soluciones de la ec. (4.12), como resultado de la intersección entre el potencial vector del láser,  $A_L(t) = A_{L0} \sin(\omega_L t)$  (en línea roja) y las rectas  $\beta_{\pm} = -k_z \pm \sqrt{v_o^2 - k_{\perp}^2}$ , para momento del electrón fijo con  $k_z > 0$ . En el esquema, el tiempo de inicio del pulso XUV es cero. (a) Región *tipo paralela*, caracterizada por dos tiempos de ionización por ciclo óptico. (b) Región de *tipo perpendicular*, caracterizada por cuatro tiempos de ionización por ciclo óptico.

dados por

$$t^{(1,3)} = \frac{\pi}{\omega_L} + \frac{1}{\omega_L} \sin^{-1} \left| \frac{\beta_{-}(\mathbf{k})}{A_{L0}} \right| \quad \text{y} \quad t^{(1,4)} = \frac{3\pi}{\omega_L} - t^{(1,3)}. \quad (4.22)$$

En general, estos tiempos de ionización van a depender del inicio de la ventana activa, es decir, del inicio del pulso XUV. Este análisis se lleva a cabo para un campo láser IR, cuyo potencial vector es cero cuando inicia la ventana de ionización. Cuando éste no es el caso, tenemos que considerar un desplazamiento temporal en las ecuaciones (4.20) hasta (4.22) de los tiempos de ionización.

Conociendo los tiempos de ionización podemos aplicar la aproximación del punto silla a la ecuación (4.8) [ver Apéndice B]. La amplitud de transición dentro del SCM se escribe como una superposición coherente de trayectorias del electrón que son emitidos

con momento  $\mathbf{k}$  a tiempo  $t_s$ :

$$T_{if}^- = \sum_{t_s} \frac{-i\sqrt{2\pi}F_{X0}(t_s)}{|\ddot{S}(t_s)|^{1/2}} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s)) \exp \left\{ iS(t_s) + i\frac{\pi}{4} \text{sgn}[\ddot{S}(t_s)] \right\}, \quad (4.23)$$

donde  $\ddot{S}(t_s) = \frac{d^2 S(t)}{dt^2}|_{t_s} = -[\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s)] \cdot \mathbf{F}_L(t_s)$  con  $S(t)$  dada por la ec. (4.9) y los tiempos de ionización  $t_s$  son las soluciones reales de la ec. (4.12). Luego, considerando los dos o cuatros tiempos de ionización por ciclo IR de las situaciones *parallel*- o *tipo perpendicular*, se puede escribir como

$$T_{if}^- = \sum_{j=1}^N \left[ \sum_{\alpha=1}^2 g(\mathbf{k}, t^{(j,\alpha)}) + \Theta \left( 1 + \frac{\beta_-(\mathbf{k})}{A_{L0}} \right) \sum_{\alpha=3}^4 g(\mathbf{k}, t^{(j,\alpha)}) \right], \quad (4.24)$$

con  $N$  el número entero de ciclos del campo láser involucrados en la duración del pulso XUV, el cual posee una función envolvente que varía lentamente con el tiempo  $F_{X0}(t)$ . Hemos introducido la función de Heaviside  $\Theta$ , de manera que el segundo término contribuye solamente en el caso *tipo perpendicular* cuando  $\beta_-(\mathbf{k}) \geq -A_{L0}$  y el término  $g(\mathbf{k}, t^{(j,\alpha)})$  está dado por

$$g(\mathbf{k}, t^{(j,\alpha)}) = \frac{\sqrt{2\pi}F_{X0}(t^{(j,\alpha)})d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t^{(j,\alpha)}))}{|[\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t^{(j,\alpha)})] \cdot \mathbf{F}_L(t^{(j,\alpha)})|^{1/2}} \exp \left[ iS(t^{(j,\alpha)}) + i\frac{\pi}{4} \text{sgn}[\ddot{S}(t^{(j,\alpha)})] \right]. \quad (4.25)$$

Expandiendo la sumatoria sobre  $\alpha$  en la ec. (4.24), obtenemos para cada uno de los términos que

$$\sum_{j=1}^N \sum_{\alpha=1(3)}^{2(4)} g(\mathbf{k}, t^{(j,\alpha)}) = 2 \frac{h(\mathbf{k})}{\left| \sqrt{1 - (\beta_{\pm}(\mathbf{k})/A_{L0})^2} \right|^{1/2}} \cos \left( \frac{\Delta S_{j\pm}}{2} \pm \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_{\pm}(\mathbf{k})] \right) \sum_{j=1}^N e^{i\tilde{S}_{j\pm}} \quad (4.26)$$

donde  $h(\mathbf{k})$  es igual a

$$h(\mathbf{k}) = \frac{\sqrt{2\pi}F_{X0}}{|\sqrt{v_0^2 - k_{\perp}^2}F_{L0}|^{1/2}} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t^{(j,\alpha)})) \quad (4.27)$$

con la componente  $z$  del elemento dipolar para el átomo de hidrógeno desde el  $1s$  [ec. (2.95)] dada por la ec. (B.2), y se escribe como

$$d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t)) = -\frac{i2^{7/2}}{\pi} (2I_P)^{5/4} \frac{k_z + A_L(t)}{[v_0^2 + 2I_P]^3}. \quad (4.28)$$

De acuerdo a la ecuación para los tiempos de ionización (4.12), tenemos que  $d_z$  que es proporcional a  $k_z + A_L(t)$ , es también proporcional a  $\pm \sqrt{v_0^2 - k_{\perp}^2}$ . Evaluando  $d_z$  en

los tiempos  $t^{(j,\alpha)}$  o  $t^{(j,\alpha+1)}$  con  $\alpha = 1(3)$ , es decir, en el primer o segundo semiciclo IR, se puede observar de la Fig. 4.7 que la rama positiva de la raíz cuadrada intersecta al primer semiciclo en los tiempos  $t^{(j,\alpha)}$  y  $t^{(j,\alpha+1)}$  con  $\alpha = 1$ . Del mismo modo, la rama negativa intersecta al segundo semiciclo en los tiempos correspondientes a  $\alpha = 3$ . Por lo tanto  $d_z$  tiene igual magnitud y signo opuesto. De esta manera la ec. (4.29) junto a la ec. (4.28) nos queda de la forma

$$h(k_\perp) = \frac{\sqrt{2\pi}F_{X0}}{|\sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}F_{L0}|^{1/2}} \frac{-i2^{7/2} \pm \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}}{\pi \omega_X^3}. \quad (4.29)$$

En la ec. (4.26) tenemos que  $\Delta S_{j,\pm}$  y  $\bar{S}_{j,\pm}$  son la acción acumulada y la acción promedio, respectivamente, para dos trayectorias del electrón emitidas dentro de un mismo ciclo  $j$ , definidas como

$$\Delta S_{j,\pm} = S(t^{(j,\alpha)}) - S(t^{(j,\alpha+1)}), \quad \bar{S}_{j,\pm} = [S(t^{(j,\alpha)}) + S(t^{(j,\alpha+1)})]/2, \quad (4.30)$$

donde el signo  $+(-)$  corresponde a  $\alpha = 1(3)$ .

La acción semiclásica  $S(t)$  dada por la ec. (4.9) se escribe como

$$S(t^{(j,\alpha)}) = \left( \frac{k_z^2}{2} + I_P + \frac{F_{L0}^2}{4\omega_L^2} - \omega_X \right) t^{(j,\alpha)} - \frac{F_{L0}}{\omega_L^2} k_z \cos(\omega t^{(j,\alpha)}) - \frac{F_{L0}^2}{8\omega_L^3} \sin(2\omega t^{(j,\alpha)}), \quad (4.31)$$

que evaluada en los tiempos de ionización de la ec. (4.19), y reemplazando en la ec. (4.30) se obtiene que

$$\Delta S_\pm = \frac{\tilde{S}}{2} \left[ \frac{2}{\pi} \sin^{-1} |\beta_\pm(\mathbf{k})/A_{L0}| - 1 \right] - \frac{\text{sgn}[\beta_\pm(\mathbf{k})]}{2\omega_L} (4k_z + \beta_\pm(\mathbf{k})) \sqrt{A_{L0}^2 - \beta_\pm^2(\mathbf{k})} \quad (4.32)$$

donde ambas acciones acumuladas son independientes del ciclo  $j$ . Mientras que las acciones promedio vienen dadas por

$$\bar{S}_{j,\pm} = S_{0\pm} + j\tilde{S}, \quad (4.33)$$

las cuales dependen linealmente del ciclo  $j$ , donde  $\tilde{S} = (2\pi/\omega_L)(E + I_P + U_P - \omega_X)$  con  $U_P = (F_{L0}/2\omega_L)^2$  y  $S_{0-} = 3S_{0+} = -3\tilde{S}/4$ .

Utilizando la ec. (4.33) en la ec. (4.26), y reemplazando en la ec. (4.24), se puede mostrar que cada uno de los  $N$  términos de la ec. (4.24) es proporcional a

$$e^{ij\tilde{S}} \left[ f_+(\mathbf{k}) \cos \left( \frac{\Delta S_+}{2} + \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_+(\mathbf{k})] \right) - \Theta(1 + \frac{\beta_-}{A_{L0}}) f_-(\mathbf{k}) \cos \left( \frac{\Delta S_-}{2} - \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_-(\mathbf{k})] \right) \right], \quad (4.34)$$

donde

$$f_{\pm}(\mathbf{k}) = e^{\pm i\tilde{S}/4} |1 - (\beta_{\pm}(\mathbf{k})/A_{L0})^2|^{-1/4}. \quad (4.35)$$

Finalmente, haciendo uso de las ecs. (4.26)-(4.35), tenemos que, cuando se realiza la suma sobre los  $N$  ciclos ópticos en la ec. (4.24), la probabilidad de emisión [ec. (2.88)] nos queda como

$$|T_{if}^-|^2 = 4\Gamma(k_{\perp})F(\mathbf{k})B(k), \quad (4.36)$$

donde el factor que denominamos de interferencia *interciclo*, viene dado por

$$B(k) = \frac{\sin^2(N\tilde{S}/2)}{\sin^2(\tilde{S}/2)}, \quad (4.37)$$

con

$$\tilde{S} = (2\pi/\omega_L)(E + I_P + U_P - \omega_X), \quad (4.38)$$

y el factor de interferencia *intraciclo* viene dado por

$$F(\mathbf{k}) = \left| f_+(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_+}{2} + \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_+(\mathbf{k})]\right) - \Theta\left(1 + \frac{\beta_-}{A_{L0}}\right) f_-(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_-}{2} - \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_-(\mathbf{k})]\right) \right|^2. \quad (4.39)$$

La tasa de ionización  $\Gamma(k_{\perp})$  está dada por el módulo cuadrado de la ec. (4.29), la cual es idéntica para todas las trayectorias de ionización subsiguientes, y depende de la componente perpendicular del momento final del fotoelectrón,  $k_{\perp}$ , a través de

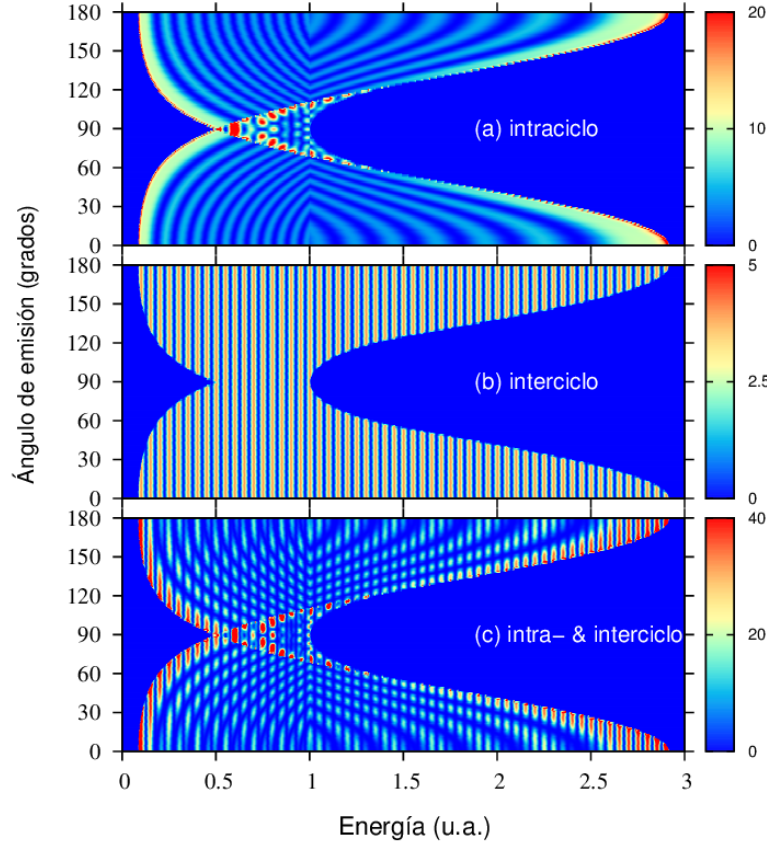
$$\Gamma(k_{\perp}) = \frac{4F_{X0}^2}{\pi F_{L0}\omega_X^6} \sqrt{v_0^2 - k_{\perp}^2}. \quad (4.40)$$

Los resultados precedentes se obtuvieron para el caso en que  $k_z \geq 0$  como se mencionó anteriormente. Debido a la simetría cilíndrica que presenta el sistema, para el caso negativo se pueden deducir directamente reemplazando  $k_z$  por  $|k_z|$  en las ecuaciones anteriores.

La ecuación (4.36), indica que el espectro del fotoelectrón puede factorizarse en dos contribuciones análogas a las descritas en el capítulo 3 para ionización por un pulso IR: i) la interferencia *intraciclo*, proveniente de trayectorias del electrón dentro del mismo ciclo óptico, dada por el factor  $F(\mathbf{k})$ , y ii) la interferencia *interciclo*, proveniente de trayectorias emitidas en diferentes ciclos ópticos del láser, que dan lugar a las mencionadas bandas laterales, a través del factor  $B(k)$ . Este último factor es periódico en la energía final del fotoelectrón y cuando  $N \rightarrow \infty$  se vuelve una serie de funciones  $\delta$  de Dirac, es decir,  $B(k) \rightarrow \sum_n \delta(E - E_n)$ , donde

$$E_n = \omega_X + n\omega_L - I_P - U_P, \quad (4.41)$$

son las posiciones de las bandas laterales y  $n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ , es el número de fotones del láser absorbidos ( $n > 0$ ) o emitidos ( $n < 0$ ) habiendo absorbido un fotón XUV.



**Figura 4.8:** Espectro del fotoelectrón para ionización de hidrógeno atómico desde el  $1s$ . (a) Factor de interferencia intraciclo en el SCM  $F(\mathbf{k})$ , (b) factor de interferencia interciclo en el SCM  $B(k)$ , considerando un número de ciclos ópticos del láser de  $N = 2$ , y (c) el producto  $F(\mathbf{k})B(k)$ , mostrando el juego de las interferencias inter- e intraciclo. Los parámetros de los pulsos IR y XUV están dados por  $\omega_L = F_{L0} = F_{X0} = 0,05$  u.a. y  $\omega_X = 1,5$  u.a.

En la Fig. 4.8 se muestran las contribuciones respectivas de los factores intra- e interciclo,  $F(\mathbf{k})$  y  $B(k)$ , a la probabilidad de emisión dentro del SCM, ec. (4.36), para una duración de pulso XUV de  $2T_L$ . En la Fig. 4.8(a) presentamos el factor intraciclo  $F(\mathbf{k})$ , que depende tanto de la energía como del ángulo de emisión del fotoelectrón. Este factor tiene una estructura compleja en la región *tipo perpendicular*, que involucra la interferencia de cuatro trayectorias del electrón por ciclo óptico del láser, en comparación con la región *tipo paralela* que contribuye sólo con dos trayectorias. Además, la distribución presenta un salto en el espectro del fotoelectrón debido a la discontinuidad de la función signo en la ec. (4.39). Dado que el signo  $\beta_-(\mathbf{k})$  permanece siempre negativo en todo el dominio, la discontinuidad se presenta para  $\beta_+(\mathbf{k}) = 0$  (es decir, cuando cambia su signo). Lo último se puede identificar en la figura para un valor de energía  $E_{\text{disc}} = v_0^2/2 = 1$  u.a., el cual es independiente del ángulo de emisión.

En la Fig. 4.8(b), graficamos el factor de interciclo  $B(k)$  en el dominio clásico, observando franjas periódicas separadas por la energía del fotón del láser  $\omega_L$ , situadas en valores de energías  $E_n$  dadas por la ecuación (4.41). En la Fig. 4.8(c) obtenemos el espectro del fotoelectrón cuando se multiplican los factores intra- e interciclo, reafirmando el hecho de que la interferencia intraciclo funciona como un modulador del patrón de interferencia interciclo.

#### 4.2.1. Comparación con otros modelos: SFA y TDSE

Para corroborar la conclusión general del SCM, la cual nos dice que la distribución de momento puede interpretarse como producto de contribuciones que dan cuenta de interferencias *inter-* e *intraciclo*, vamos a analizar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo [ver ec. (2.89)] dentro de la SFA resolviendo la integral temporal de la ec. (4.8) en forma numérica y mediante la solución "exacta" (dentro del error numérico) de la TDSE empleando el método pseudo-espectral generalizado descrito en las Refs. [49, 50]. Para ello modelamos a los campos XUV y láser IR de la forma

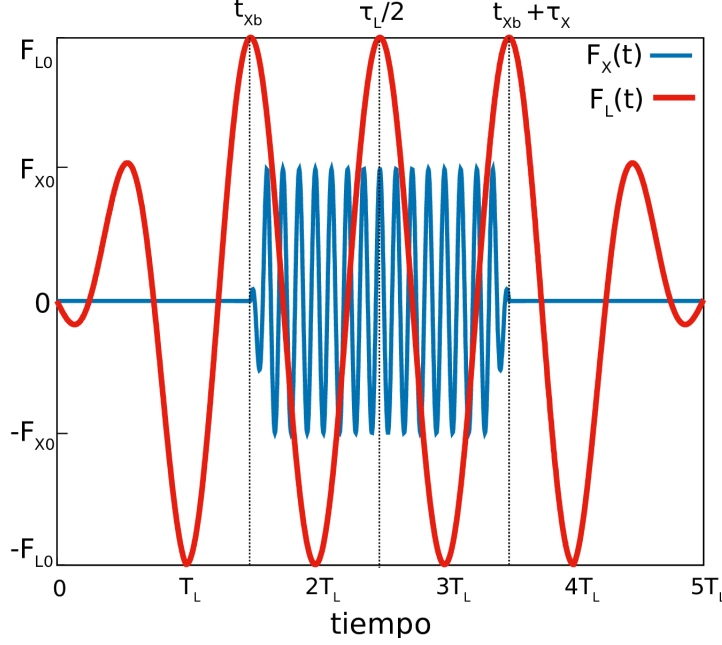
$$\mathbf{F}_i(t) = F_{i0}(t - t_{ib}) \cos \left[ \omega_i \left( t - \Delta_i - \frac{\tau_L}{2} \right) \right] \mathbf{e}_z \quad (4.42)$$

donde  $t_{ib}$  indica el inicio del pulso y  $\Delta_i$  denota el desfase del pulso  $i$  respecto del centro de una onda (IR) tipo coseno, con  $i = X, L$  para denotar a los pulsos XUV y láser IR, respectivamente. Las funciones envolventes de los campos eléctricos en la ec. (4.42) fueron escogidas con una forma trapezoidal, la cual contiene rampas de crecimiento lineal al inicio y de decrecimiento lineal al final del pulso de un ciclo cada una:

$$F_{i0}(t) = F_{i0} \begin{cases} t/T_i & \text{si } 0 \leq t \leq T_i \\ 1 & \text{si } T_i \leq t \leq \tau_i - T_i \\ (\tau_i - t)/T_i & \text{si } \tau_i - T_i \leq t \leq \tau_i \\ 0 & \text{en cualquier otro caso} \end{cases} \quad (4.43)$$

con  $T_i = 2\pi/\omega_i$  y  $\tau_i$ , el período y la duración del campo  $i$ , respectivamente. Para mayor simplicidad, vamos a suponer que la duración de ambos campos involucran un número entero de ciclos, es decir,  $\tau_i = N_i T_i$  donde  $N_i$  es un número natural. Escogemos el origen de la escala temporal como el inicio del pulso del láser IR, es decir,  $t_{Lb} = 0$  sin desplazamiento  $\Delta_L = 0$ , de esta manera el campo láser IR es un pulso tipo coseno centrado en la mitad. El comienzo del pulso XUV,  $t_{Xb} = \Delta_X + \tau_L/2 - \tau_X/2$ , marca el inicio temporal de la ventana activa para LAPE, que corresponde al intervalo temporal  $[t_{Xb}, t_{Xb} + \tau_X]$  que es cuando ambos pulsos están superpuestos. La figura (4.9) muestra la configuración de los campos XUV e IR modelados por la ec. (4.42), para duraciones de los campos  $\tau_X = 2T_L$  y  $\tau_L = 5T_L$ . Como  $\Delta_X = 0$ , esto significa que la posición para

la máxima amplitud de ambos campos es la misma, es decir, que ambos pulsos están centrados en  $\tau_L/2$ .



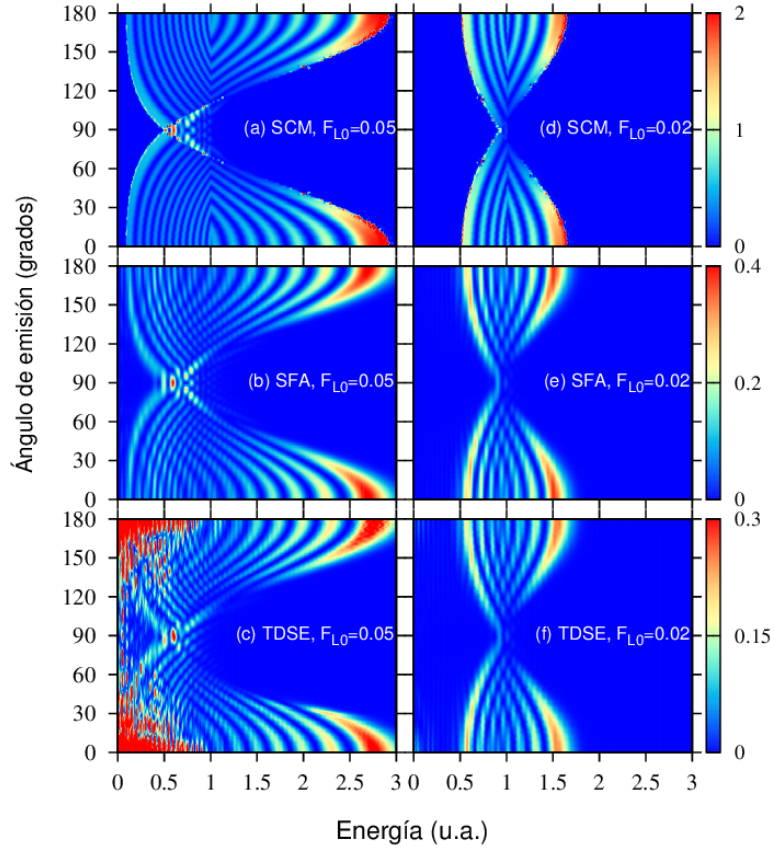
**Figura 4.9:** Esquema de los campos XUV e IR dados por la ec. (4.42) para retardo temporal  $\Delta_X = 0$ . En línea punteada se indica el inicio y final de la ventana activa para LAPE  $[t_{xb}, t_{xb} + \tau_X]$ . En los ejes horizontal y vertical se muestran el número de períodos del láser que involucra la duración de los campos y la máxima amplitud de los mismos, respectivamente.

Para los resultados que mostramos a continuación utilizamos pulsos XUV e IR con frecuencias  $\omega_X = 1,5$  u.a. y  $\omega_L = 0,05$  u.a., respectivamente, y una duración del campo láser de  $\tau_L = 5T_L$ . Además vamos a considerar duraciones del pulso XUV que involucren un número entero de períodos del láser, es decir,  $\tau_X = NT_L$ .

En primer lugar, en la Fig. 4.10, mostramos la distribución de probabilidad de ionización para distintas amplitudes del campo láser. Los resultados mostrados en las Figs. 4.10 (a-c) corresponden a una amplitud de  $F_{L0} = 0,05$  u.a., mientras que en las Figs. 4.10 (d-f) corresponden a  $F_{L0} = 0,02$  u.a.. Dentro del SCM, el espectro del electrón, [Fig. 4.10 (a)], se explica en su totalidad por el factor de interferencia intraciclo  $F(\mathbf{k})$  de la Fig. 4.8 (a) ya que el factor intraciclo dado por la ec. (4.39) corresponde al espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = T_L$ , con la única diferencia de que en la Fig. 4.10(a) la distribución del momento incluye el factor  $8\pi k\Gamma(k_\perp)$  en el cálculo de la probabilidad de ionización [ver ecs. (2.89) y (4.36)]. En la segunda fila (b) y (e), se muestran los resultados de la SFA mientras que en la tercera fila (c) y (f), los correspondientes a la solución numérica de la TDSE. Encontramos que las distribuciones resueltas en energía y ángulo dentro del SCM y la SFA están en acuerdo con la TDSE, poniendo en evidencia que el efecto del potencial coulombiano en el espectro del fotoelectrón es muy pequeño para procesos LAPE. Sin



embargo, el análisis del efecto del potencial de Coulomb del núcleo remanente sobre el electrón, merece un estudio exhaustivo, que está más allá del alcance de esta tesis.



**Figura 4.10:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para ionización de hidrógeno atómico desde el  $1s$ , en unidades arbitrarias, para un pulso XUV de duración  $\tau_X = T_L$  y retardo temporal  $\Delta_X = 0$ , calculado a distintas intensidades del campo láser ( $F_{L0} = 0,05$  u.a. en a, b, y c, y  $F_{L0} = 0,02$  u.a. en d, e, y f), dentro del SCM (a y d), la SFA (b y e) y la TDSE (c y f). La frecuencia del láser IR es de  $\omega_L = 0,05$  u.a. y los parámetros del pulso XUV son  $\omega_X = 1,5$  u.a. y  $F_{X0} = 0,05$  u.a..

Para los parámetros del láser y del XUV utilizados en la columna izquierda de la Fig. 4.10, los límites clásicos inferior y superior para la distribución de energía en la dirección de emisión a lo largo del eje de polarización ( $\theta = 0^\circ$  y  $\theta = 180^\circ$ ) dados por la ec. (4.16), son  $E_{\text{low}} \simeq 0,086$  u.a. y  $E_{\text{up}} \simeq 2,91$  u.a., respectivamente [56]. La estructura presente en la distribución de probabilidad a bajas energías en el cálculo de la TDSE de la Fig. 4.10 (c), se debe a la ionización por encima del umbral producida por el campo IR solamente. Ésta contribución se suprime en los cálculos SFA [58] que resulta de la ec. (4.8) [ver Fig. 4.10(b)], y se ignora completamente en nuestro SCM, Fig. 4.10 (a). Para emisión perpendicular a la dirección de polarización ( $\theta = 90^\circ$ ), los límites clásicos inferior y superior (primera columna de la figura 4.10) están dados por la ec. (4.17) con valores  $E_1 = 0,5$  u.a. y  $E_2 = 1$  u.a., respectivamente [57]. Los resultados cuánticos de la SFA y la TDSE se ajustan a los límites clásicos dados por el SCM, excepto por

una delgada probabilidad que se extiende más allá de los límites clásicos en el dominio de la energía.

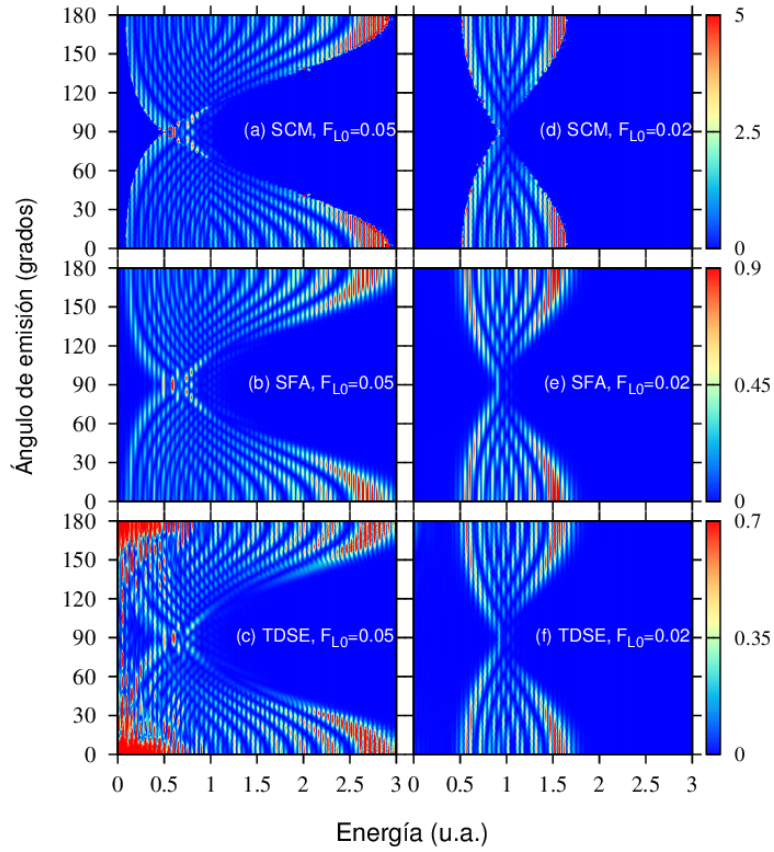
Como se observa en las Figs. 4.8 y 4.10(a) y (d), el SCM predice una discontinuidad en las franjas intraciclo para un valor de energía  $E_{\text{dis}} = v_0^2/2 = 1$  u.a. Las franjas intraciclo para emisión hacia adelante ( $\theta < 90^\circ$ ) tienen pendiente positiva a la izquierda de la discontinuidad ( $E < E_{\text{dis}} = 1$  u.a.), mientras que a la derecha ( $E > E_{\text{dis}} = 1$  u.a.) tienen pendiente negativa en las Figs. 4.10(a) y 4.10(d). Para emisión hacia atrás ( $\theta > 90^\circ$ ) estas franjas poseen un comportamiento opuesto. Observamos que tal discontinuidad se suaviza en la SFA y la TDSE, donde los dos tipos de franjas intraciclo (con pendiente positiva y negativa) coexisten en una región de energía cercana a  $E_{\text{dis}}$ .

### 4.2.2. Dependencia con la intensidad

Para estudiar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo en función de la intensidad del láser, mostramos en la columna derecha de la Fig. 4.10 los resultados para una intensidad del campo láser de  $F_{L0} = 0,02$  u.a.. Como el láser es menos intenso que el utilizado en la primera columna, la región clásicamente permitida se contrae. En particular, la distribución de energía a lo largo del eje de polarización está limitada por los límites clásicos inferior y superior dados por la ec. (4.16), cuyos valores son  $E_{\text{low}} \simeq 0,51$  u.a. y  $E_{\text{up}} \simeq 1,64$  u.a., respectivamente [56]. A su vez, los límites clásicos para emisión perpendicular al eje de polarización están dados por la ec. (4.17) y son  $E_1 \simeq 0,92$  u.a. y  $E_2 = 1$  u.a., donde se observa que el último es independiente de la intensidad del láser [57]. De las Figs. 4.10 (a) y 4.10 (b), observamos que el número de franjas intraciclo disminuye a medida que decrece la intensidad del láser IR.

Para los cálculos de la TDSE, en la Fig. 4.10 (f), observamos una contribución por ionización del pulso IR mucho menor en relación a la Fig. 4.10 (c), puesto que la intensidad del láser en esta última es sólo el 16 % de lo que corresponde a la anterior. Por una comparación directa entre los espectros del fotoelectrón resueltos en ángulo para intensidades diferentes del láser, podemos concluir que ellos pueden ser muy útiles a la hora de determinar experimentalmente la magnitud de la intensidad del láser.

Para una duración del pulso XUV que involucra varios períodos del campo láser, las interferencias *interciclo* dan lugar a la formación de bandas laterales. Esto se observa en la Fig. 4.11 para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 2T_L$ . El resto de los parámetros son los mismos que los utilizados en la Fig. 4.10. En general, observamos que el dominio clásico del espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo es independiente de la duración del pulso XUV ( $\tau_X \geq T_L$ ) [al igual que en la Fig. 4.10]. La única diferencia entre los espectros de la Fig. 4.10 y la Fig. 4.11, es la formación de bandas laterales representadas en líneas verticales separadas entre sí por la energía de un fotón IR  $\omega_L = 0,05$  u.a. y situadas en valores de energía  $E_n$  dados por la ec. (4.41). Vemos que las bandas laterales



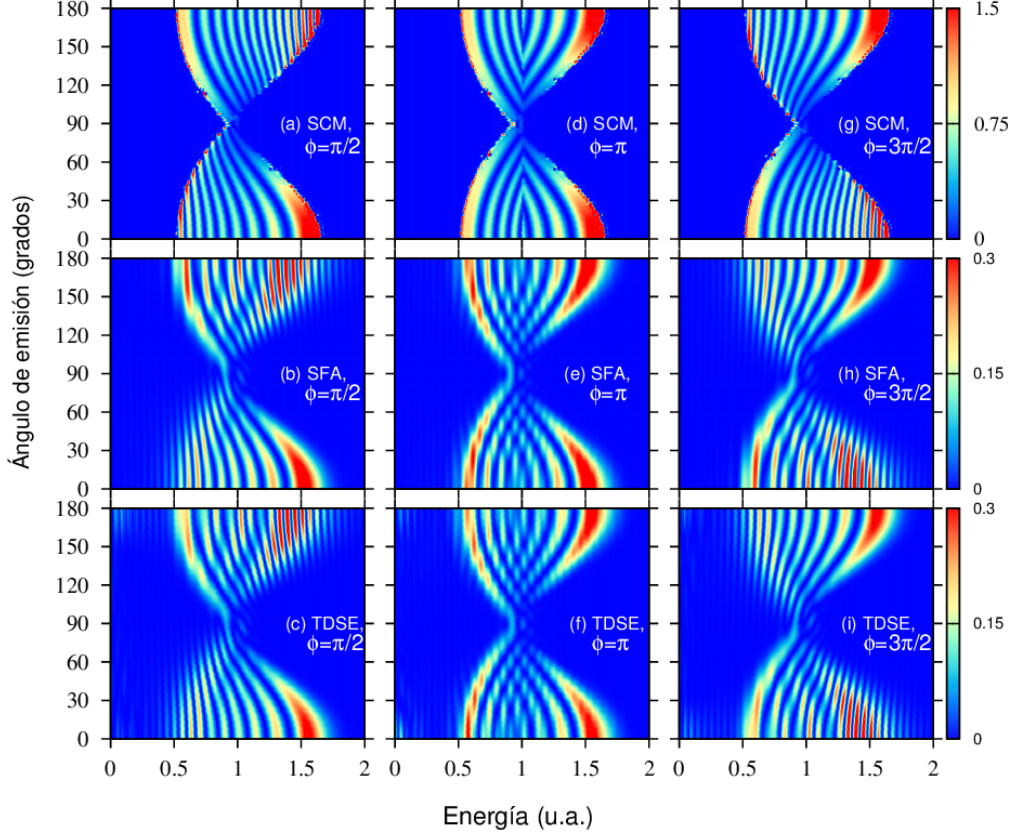
**Figura 4.11:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para ionización de hidrógeno atómico desde el  $1s$ , en unidades arbitrarias, para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 2T_L$  y retardo temporal  $\Delta_X = 0$ , calculado a distintas intensidades del láser ( $F_{L0} = 0,05$  u.a. en a, b, y c, y  $F_{L0} = 0,02$  u.a. en d, e, y f), dentro del SCM (a y d), la SFA (b y e) y la TDSE (c and f). La frecuencia del láser IR es  $\omega_L = 0,05$  u.a. y los parámetros del pulso XUV son  $\omega_X = 1,5$  u.a. y  $F_{X0} = 0,05$  u.a..

que derivan de la superposición coherente de trayectorias del electrón provenientes de dos ciclos ópticos diferentes, son moduladas por el factor intraciclo de la Fig. 4.10, que resulta de la contribución de trayectorias del electrón dentro de un mismo ciclo óptico del láser.

### 4.2.3. Dependencia con el retardo temporal entre los pulsos XUV e IR

Hasta ahora, hemos visto que el SCM y la SFA, predicen emisión simétrica hacia atrás y hacia adelante, es decir, que se pueden intercambiar los ángulos hacia adelante o hacia atrás, i.e.  $\theta \leftrightarrow \pi - \theta$  [veáanse las Figs. 4.10 (a), 4.10 (b), 4.10 (d), 4.10 (e) y las Figs. 4.11 (a), 4.11 (b), 4.11 (d), and 4.11 (e)]. Esta simetría aproximadamente se mantiene, pero no es exacta en los cálculos de la TDSE y existen dos razones para esta ruptura: (i) el efecto del potencial de Coulomb del ión remanente, y (ii) el vaciamiento

del estado fundamental [45, 51, 58, 59], dos efectos que son completamente ignorados en la SFA y, por lo tanto, también en el SCM.



**Figura 4.12:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para ionización de hidrógeno atómico desde el  $1s$ , en unidades arbitrarias, para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = T_L$ , en función de la fase óptica ( $\phi = \pi/2$  en a, b, y c,  $\pi$  en d, e, y f, y  $3\pi/2$  en g, h, e i) dentro del SCM (a, d y g), la SFA (b, e y h) y la TDSE (c, f e i).  $F_{X0} = \omega_L = 0,05$  u.a.  $\omega_X = 1,5$  u.a. y  $F_{L0} = 0,02$  u.a..

Otra manera de romper esta simetría se logra incluyendo un retardo temporal  $\Delta_X \neq 0$  con respecto al tiempo de inicio del pulso XUV  $t_{Xb} = \tau_L/2 - \tau_X/2$  cuando el centro de ambos pulsos coinciden ( $\Delta_X=0$ ) [ver Fig. 4.9]. A modo de comparación, vamos a definir la fase óptica de módulo  $2\pi$ , como la fase que indica el tiempo de inicio del pulso XUV con respecto al potencial vector  $\mathbf{A}(t)$ , como <sup>3</sup>

$$\phi \equiv \omega_L t_{Xb} = \omega_L \Delta_X + (N_L - N)\pi, \quad (4.44)$$

donde  $\phi$  está restringido a  $0 \leq \phi < 2\pi$ . De esta manera, una variación en  $\Delta_X$  en la ec. (4.42), equivale a una variación en la fase óptica  $\phi$  de la ec. (4.44). A medida que la ventana activa para la ionización XUV se desplaza en el dominio temporal, el potencial vector el láser IR cambia su forma y, por lo tanto, la forma del patrón de interferencia

<sup>3</sup>Aquí la equivalencia  $2\pi$  establece que si  $a \equiv b$  entonces  $(a - b)/2\pi$  es un número entero.

intraciclo se ve afectado. En la Fig. 4.12, observamos cómo el patrón de interferencia intraciclo (espectro del fotoelectrón para  $\tau_X = T_L$ ) cambia a medida que la fase óptica varía. Así, para los valores de fase  $\phi = \pi/2, \pi$ , y  $3\pi/2$ , se muestran las distribuciones en energía y ángulo del electrón en las columnas izquierda (a-c), central (d-f), y derecha (g-i), respectivamente. En las Figs. 4.12 (a), 4.12 (d), y 4.12 (g), el SCM exhibe un cambio del patrón de interferencia intraciclo para distintos valores de  $\phi$ .

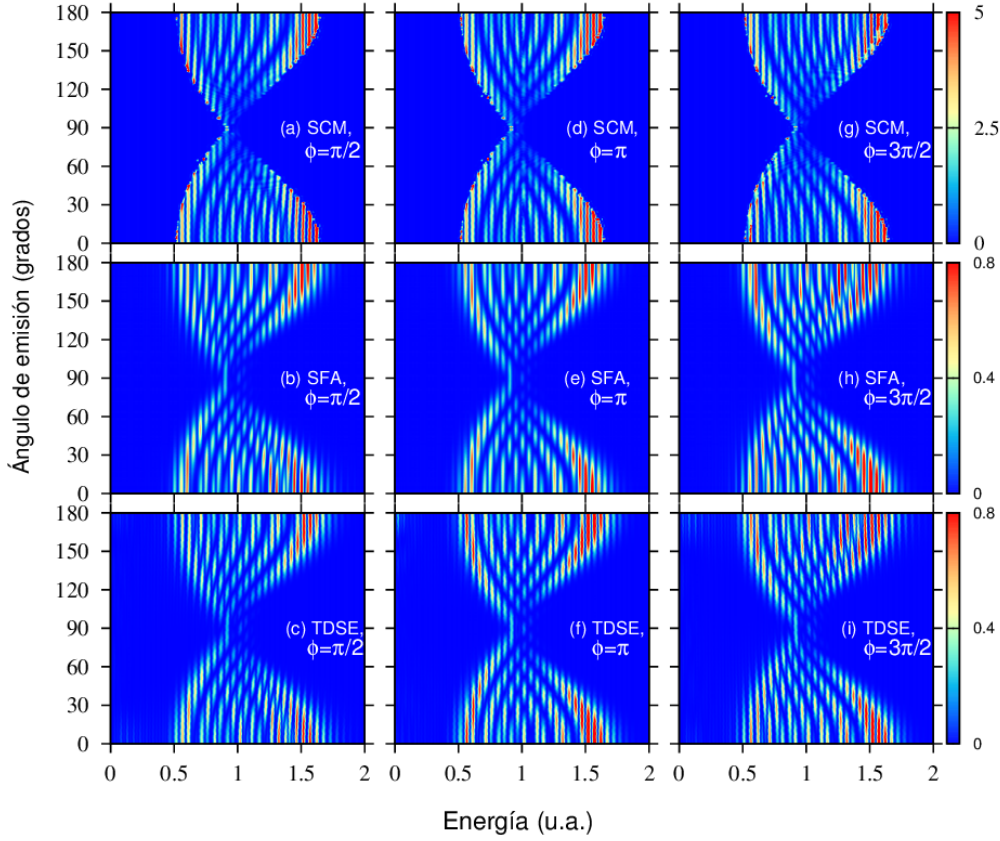
Para la fase óptica  $\phi = \pi$ , en la Fig. 4.12 (d), la ventana activa se desplaza medio ciclo óptico del láser con respecto a la fase óptica  $\phi = 0$  de la Fig. 4.10 (d), y, por lo tanto, el potencial vector relativo a la ventana activa se invierte (cambia de signo). Por lo tanto, deberíamos esperar una inversión en la emisión en el espectro del electrón. Sin embargo, debido a que presenta simetría de emisión hacia adelante y hacia atrás, el espectro del fotoelectrón permanece sin alterarse. Mientras que esta inversión está presente en las Figs. 4.12 (a) y 4.12 (g), dado que el cambio de la fase óptica es  $\pi$  [ec. 4.44]. Observamos, de manera similar al caso  $\phi = 0$ , que la discontinuidad antes mencionada ocurre para un valor de energía  $E_{\text{dis}} = 1$  u.a. en la Fig. 4.12 (d). Sin embargo, para el caso general, la línea de discontinuidad depende de la fase  $\phi$  (a través de  $t_{Xb}$ ) y del ángulo de emisión; de hecho, se puede deducir que los valores de energía donde se produce la discontinuidad satisfacen

$$E_{\text{dis}}(t_{Xb}, \theta) = \frac{1}{2} \left[ \sqrt{v_0^2 - A_L^2(t_{Xb}) \sin^2 \theta} - A_L(t_{Xb}) \cos \theta \right]^2. \quad (4.45)$$

Para  $\phi = 0$  y  $\phi = \pi$ , tenemos que  $E_{\text{dis}} = v_0^2/2 = 1$  u.a., el cual es independiente del ángulo de emisión  $\theta$ . Para  $\phi = \pi/2$ , Fig. 4.12 (a), la discontinuidad se desplaza hacia un límite clásico en la ec. (4.45), mientras que para otro valor de la fase  $\phi = 3\pi/2$ , Fig. 4.12 (g), la discontinuidad coincide con el valor de otro límite clásico en la ec. (4.45), perdiendo entidad en ambos casos. Las distribuciones en energía-ángulo de la SFA y la TDSE, en las respectivas Figs. 4.12 (e) y 4.12 (f), suavizan la discontinuidad discutida para  $\phi = 0$ . Todos los resultados obtenidos dentro del SCM coinciden cualitativamente con los de la SFA y la TDSE, para todos los valores de la fase óptica.

Para estudiar la formación de bandas laterales para diferentes fases ópticas  $\phi$ , en la Fig. 4.13 graficamos el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo. Los parámetros utilizados son los mismos que en la figura 4.12, pero para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 2T_L$ . Vemos la presencia de las bandas laterales producidas por la interferencia *interciclo* moduladas por el patrón de interferencia intraciclo de la Fig. 4.12. Como se explica anteriormente, el espectro del fotoelectrón resuelto en energía y ángulo es exactamente simétrico cuando se calcula para  $\phi = \pi$  dentro del SCM [Fig. 4.13 (d)] y la SFA [Fig. 4.13 (e)], y aproximadamente simétrico cuando se calcula dentro de la TDSE. Además, vemos que la asimetría observada en la interferencia intraciclo para las fases ópticas  $\phi = \pi/2$  en las Figs. 4.12 (a-c) y  $3\pi/2$  en las Figs. 4.12 (g-i), es fuertemente





**Figura 4.13:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para ionización de hidrógeno atómico desde el  $1s$ , en unidades arbitrarias, para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 2T_L$ , como función de la fase óptica ( $\phi = \pi/2$  en a, b, y c,  $\pi$  en d, e, y f, y  $3\pi/2$  en g, h, e i), dentro del SCM (a, d y g), la SFA (b, e y h) y la TDSE (c, f e i). Los parámetros del láser son los mismos que en la figura 4.12.

suprimido en las Figs. 4.13 (a-c) y 4.13 (g-i), debido a la presencia de la interferencia *interciclo*. Por lo tanto, la dependencia del espectro del fotoelectrón con el retardo temporal, disminuye a medida que el pulso XUV aumenta la duración.

#### 4.2.4. Conclusiones

Hemos generalizado el SCM desarrollado por Arbó *et al* en Refs. [43, 44] para ionización atómica por un pulso IR hacia ionización por XUV+IR. Estudiamos el espectro del electrón resuelto en ángulo producido por hidrógeno atómico inicialmente en el estado fundamental, sujeto a un pulso XUV en presencia de campo láser IR. Caracterizamos el dominio en energía-ángulo clásicamente permitido en dos regiones diferentes: las regiones *tipo paralela* y *tipo perpendicular*. En la primera, dos trayectorias clásicas del electrón por ciclo óptico contribuyen al patrón de interferencia *intraciclo*, que modula las bandas laterales originadas por la interferencia *interciclo* de trayectorias que nacen en diferentes ciclos ópticos del láser. Mientras que en la segunda, cuatro trayec-

torias clásicas del electrón contribuyen a la interferencia. De esta manera el espectro del fotoelectrón se puede expresar como el producto de dos factores que involucran estas interferencias *intra-* e *interciclo*. Demostramos que para campos láser intensos, el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo se extiende en el dominio de energía, exhibiendo un considerable aumento de la región *tipo perpendicular*. Hemos observado un muy buen acuerdo entre los espectros de energía resuelto en ángulo dentro del SCM, la SFA y la solución *ab initio* de la TDSE.

Por otra parte, hemos analizado el espectro del electrón resuelto en ángulo para diferentes retardos temporales entre los dos pulsos. Hemos demostrado que, cuando la duración del pulso XUV es un múltiplo del período del campo láser y para fases ópticas  $\phi = 0$ , y  $\pi$ , la emisión electrónica dentro de la TDSE es altamente simétrica en emisión hacia adelante y hacia atrás, de acuerdo con la SFA y SCM. Mientras que las asimetrías se vuelven evidentes para fases ópticas diferentes de  $\phi = 0$  y  $\pi$ .

A continuación realizamos un análisis detallado del espectro de energía del fotoelectrón resuelto en ángulo obtenido en este capítulo pero considerando casos particulares de emisión electrónica, como emisión paralela y perpendicular a la polarización de los campos. Esto se debe a que existen actualmente varias teorías que describen la fotoionización asistida por láser para estos casos, lo que nos va a servir de testeo del SCM.





# Capítulo 5

## Emisión paralela y perpendicular en LAPE

En este capítulo estudiamos el espectro del fotoelectrón para procesos LAPE obtenido en la sección 4.2 para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental, focalizándonos en direcciones de emisión particulares. Vamos a repetir el análisis llevado a cabo en esa sección pero considerando casos (o cortes) particulares de la distribución de momento del fotoelectrón. Esto nos permite analizar de forma detallada la dependencia del espectro del fotoelectrón en función de los parámetros de los pulsos, poniendo en evidencia características que son difíciles de observar en un espectrograma resuelto en ángulo.

### 5.1. Emisión electrónica paralela

Vamos a considerar el caso cuando el electrón es emitido en la misma dirección de polarización de los campos XUV e IR, es decir, cuando el ángulo de emisión del electrón es de  $\theta = 0^\circ$  o bien  $k_\perp = 0$  en la ec. (4.11). De esta manera, el momento del fotoelectrón está ahora definido por  $\mathbf{k} = k_z \mathbf{e}_z$ , y se encuentra contenido en la región *tipo paralela* de la Fig. 4.6 (a). De hecho, se debe al presente caso de estudio que toda la región hereda la denominación *paralela* [56]. Sin pérdida de generalidad, vamos a restringir el estudio para momentos del fotoelectrón  $k_z \geq 0$ . Los tiempos de ionización se deducen de la ec. (4.12), y satisfacen que

$$A_L(t_s) = -k_z \pm v_0 = \beta_\pm(k_z). \quad (5.1)$$

Dado que los valores máximos y mínimos que alcanza el potencial vector son  $\pm A_{L0}$ , entonces necesariamente  $\beta_-(k_z) < -A_{L0}$ , el cual corresponde a la situación de la Fig. 4.7 (a). Luego sólo la solución positiva contribuye y los límites clásicos para la energía del fotoelectrón quedan determinados por  $v_0 - F_{L0}/\omega_L \leq k_z \leq v_0 + F_{L0}/\omega_L$ .

De acuerdo al análisis llevado a cabo en el capítulo anterior, a cada valor  $k_z$  le corresponde dos tiempos de ionización por ciclo óptico del láser:  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$  que están dados por las ecs. (4.20)-(4.22) particularizando para  $k_\perp = 0$ .

Luego, la ecuación de la probabilidad de ionización, ec. (4.36), para el caso particular de emisión paralela se escribe como

$$|T_{if}^-|^2 = 4\Gamma(0)F(k_z\mathbf{e}_z)B(k), \quad (5.2)$$

donde

$$\Gamma(0) = \frac{4F_{X0}^2}{\pi F_{L0}\omega_X^2}v_0 \quad (5.3)$$

y el factor de interferencia *intraciclo* resulta

$$F(k_z\mathbf{e}_z) = \left| f_+(k_z\mathbf{e}_z) \cos\left(\frac{\Delta S_+}{2} + \frac{\pi}{4}\text{sgn}[\beta_+(k_z)]\right) \right|^2 \quad (5.4)$$

donde la función Heaviside en la ec. (4.39) se anula para valores  $\beta_-(k_z) < -A_{L0}$ . Mientras que  $f_+$  y la acción acumulada  $\Delta S_+$  están dadas por las ecs. (4.35) y (4.32),

$$\begin{aligned} \Delta S_+ = & \frac{\tilde{S}}{2} \left\{ 1 - \frac{2}{\pi} \sin^{-1} \left[ \frac{\omega_L}{F_{L0}} |k_z - v_0| \right] \right\} \\ & + \text{sgn}(k_z - v_0) \frac{F_{L0}}{2\omega_L^2} (3k_z + v_0) \sqrt{1 - \frac{\omega_L^2}{F_{L0}^2} (k_z - v_0)^2}. \end{aligned} \quad (5.5)$$

Podemos observar que  $\Delta S_+$  presenta una discontinuidad para en  $k_z = v_0$ . Esta discontinuidad también aparece en otras teorías basadas en la SFA que utilizan el método de punto silla para el cálculo de la probabilidad de ionización, como la teoría perturbativa dependiente del tiempo a primer orden de Kazansky *et al* [60, 61] y la teoría de Bivona *et al* [62], las cuales comentamos más adelante. Para emisión paralela, la discontinuidad en  $k_z = v_0$  ocurre cuando el potencial vector del láser en el comienzo del pulso XUV  $t_{Xb}$  es cero, es decir,  $A_L(t_{Xb}) = 0$ . Esto último está relacionado con el retardo temporal entre los pulsos  $\Delta_X$ , que es nulo para esta situación.

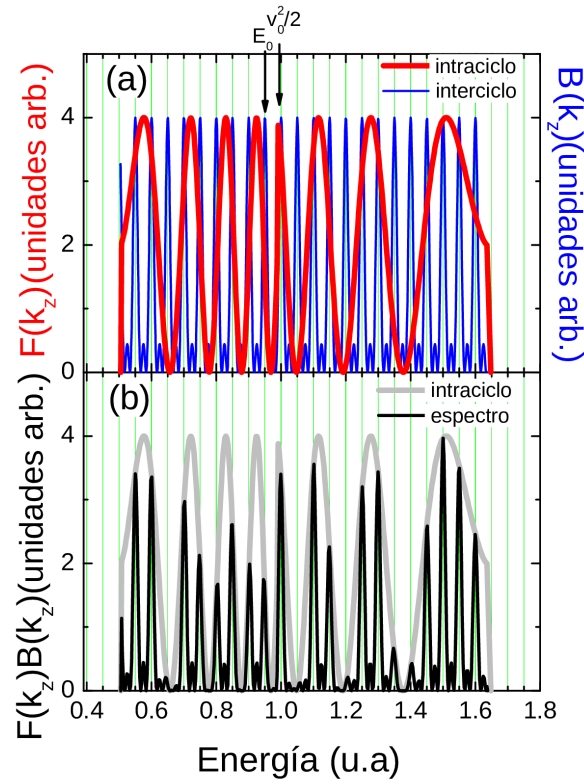
Dado que en la ec. (5.4)  $\text{sgn}[\beta_+(k_z)] = -\text{sgn}[(k_z - v_0)]$  de acuerdo a la ec. (5.1), se puede agrupar de forma conveniente los factores en la ec. (5.2) y reescribir la probabilidad de emisión como

$$|T_{if}^-|^2 = 4 \underbrace{\Gamma_{\parallel}(k_z)}_{F_{\parallel}(k_z)} \cos^2\left(\frac{\Delta S_+}{2} - \frac{\pi}{4}\right) \underbrace{\left[ \frac{\sin(N\tilde{S}/2)}{\sin(\tilde{S}/2)} \right]^2}_{B(k_z)} \quad (5.6)$$

con  $\tilde{S} = (2\pi/\omega_L)(E + I_P + U_P - \omega_X)$  y

$$\Gamma_{\parallel}(k_z) = \frac{4F_{X0}^2 v_0}{\pi F_{L0} \omega_X^6} \frac{1}{\left| \sqrt{1 - (\beta_+(k_z)/A_{L0})^2} \right|}. \quad (5.7)$$

Al igual que antes, el espectro del fotoelectrón se puede factorizar en términos de las interferencias *intra-* e *interciclo* a través de los factores  $F_{\parallel}(k_z)$  y  $B(k_z)$ , respectivamente, que dan origen a la formación de bandas laterales ubicadas en valores de energía dados por la ec. (4.41) y a la modulación de las mismas. Aquí escogimos renormalizar el factor intraciclo por conveniencia para que tenga amplitud uno.



**Figura 5.1:** (a) Patrón de interferencia siguiendo el SCM para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$ : Interferencia intraciclo dada por el factor de estructura  $F_{\parallel}(k_z)$  en línea roja, e interferencia interciclo dado por la función  $B(k_z)$  con  $N = 3$  [Eq. (5.6)]. (b) Patrón de interferencia total  $F_{\parallel}(k_z)B(k_z)$  con  $N = 3$ . Los parámetros del láser IR son  $F_{L0} = 0,02$  u.a.,  $\omega_L = 0,05$  u.a., la frecuencia del XUV  $\omega_X = 1,5$  u.a., y retardo temporal  $\Delta_X = 0$ . Ambos campos son tipo coseno. Para una mejor comparación, en línea gris clara se muestra el patrón intraciclo  $F_{\parallel}(k_z)$  de (a), y en líneas verticales se muestran las posiciones de las bandas laterales  $E_n$  de la ec. (4.41).

En la Fig. 5.1 mostramos el espectro de energía del fotoelectrón dentro del SCM para parámetros del campo láser  $F_{L0} = 0,02$  u.a.,  $\omega_L = 0,05$  u.a. y  $\tau_L = 7T_L$ , y del pulso XUV  $F_{X0} = 0,01$  u.a.,  $\omega_X = 1,5$  u.a., con duración  $\tau_X = T_L$  y  $\tau_X = 3T_L$ . En la Fig. 5.1 (a) calculamos el factor interciclo  $B(k_z)$  en línea azul, que muestra picos equiespaciados en energía separados por la frecuencia del láser IR  $\omega_L = 0,05$  u.a.,

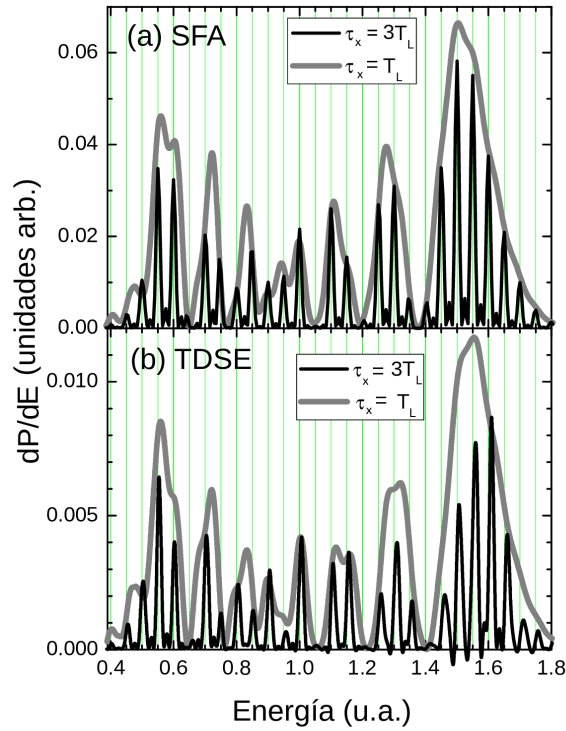
ubicados en valores de energía  $E_n$  dados por la ec. (4.41) de conservación de energía (indicados por líneas verticales verdes). El factor  $B(k_z)$  predice  $N - 2$  picos secundarios entre cada pico principal o sideband. Por ejemplo, para una duración del pulso XUV de tres ciclos ópticos del láser ( $\tau_x = 3T_L$ ) en la Fig. 5.1(a) en línea azul se observa un pico secundario y dos mínimos entre bandas laterales. Estos picos secundarios y sus mínimos están asociados a la duración del pulso XUV, y van en aumento a medida que lo haga  $\tau_X$ .

También, en la Fig. 5.1 (a) se muestra el factor de estructura intraciclo  $F_{\parallel}(k_z)$  en línea roja, con máximos en posiciones dadas por  $\Delta S = 2m\pi$ , con  $m$  entero. También puede observarse que la separación de los máximos consecutivos del factor intraciclo  $F_{\parallel}(k_z)$  depende de la energía cinética del electrón, siendo más grande su separación cerca de los límites clásicos de la ec. (4.16) ( $E_{low} = 0,51$  u.a. y  $E_{up} = 1,65$  u.a.) que a energías intermedias. Se puede observar también en el factor intraciclo una discontinuidad para un valor de energía dado por  $E = v_0^2/2$  que se debe al cambio de signo de  $v_0 - k_z$  en la acción acumulada  $\Delta S_+$ . De acuerdo a la ec. (5.1) los dos tiempos de ionización caen en la segunda mitad del ciclo óptico de la ventana activa cuando  $k_z > v_0$  [ver Fig. 4.7(a)] y a medida que  $k_z$  se aproxima a  $v_0$ , el tiempo de emisión anterior  $t^{(1,1)}$  va hacia la mitad de la ventana activa, mientras el tiempo de emisión posterior  $t^{(1,2)}$  va hacia el final de la misma. Finalmente, cuando  $k_z < v_0$ , la situación es diferente: a medida que  $k_z$  se aproxima a  $v_0$ , el tiempo de emisión anterior  $t^{(1,1)}$  se dirige hacia el comienzo de la ventana activa, mientras el tiempo de emisión posterior  $t^{(1,2)}$ , se dirige hacia la mitad. Tal discontinuidad no la vemos presente para el caso de la interferencia *intraciclo* en ionización por encima del umbral (ATI) por un pulso IR dado que  $v_0 = 0$  cuando no hay pulso XUV [ver ec. (B.16) en Apéndice B].

En la Fig. 5.1 (b) mostramos el patrón de interferencia para una ventana activa que involucra un número de ciclos ópticos del láser  $N = 3$ . Hemos igualado la tasa de ionización  $\Gamma_{\parallel}(k_z)$  a la unidad, de manera que sólo se muestra el factor  $B(k_z)F_{\parallel}(k_z)$  para centrarnos en el proceso de interferencia. Para una mejor comparación, en línea gris se muestra el patrón de interferencia intraciclo  $F_{\parallel}(k_z)$  de la Fig. 5.1 (a). Observamos que los picos o bandas laterales dados por el factor de interferencia interciclo,  $B(k_z)$  [Fig. 5.1 (a)], están modulados por el factor de interferencia intraciclo  $F_{\parallel}(k_z)$ , el cual también puede dar lugar a la supresión de bandas laterales (por ejemplo, cerca del valor de energía  $E = 1,43$  u.a.).

### 5.1.1. Comparación con otros modelos

Para comparar los resultados obtenidos dentro del SCM con los cuánticos dentro de la SFA y la TDSE, vamos a considerar los campos XUV e IR modelados a través de las ecs. (4.42) y (4.43).



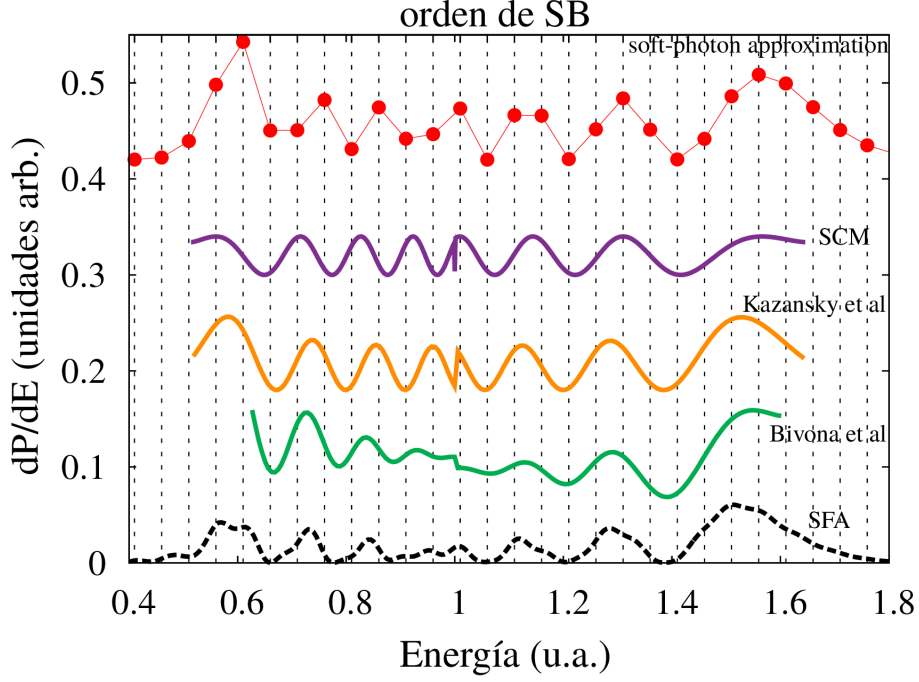
**Figura 5.2:** Distribución de energía para el caso de emisión electrónica en la dirección hacia adelante para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  dentro de la (a) SFA y (b) TDSE. Los parámetros del láser IR son  $F_{L0} = 0,02$  u.a.,  $\omega_L = 0,05$ , u.a.,  $\tau_L = 7T_L$ , mientras que los parámetros del pulso XUV son  $F_{X0} = 0,01$  u.a. y  $\omega_X = 1,5$  u.a.. En líneas verticales se muestran las posiciones de las bandas laterales  $E_n$  en la ec. (4.41).

En la Fig. 5.2 (a) y (b) se muestra la distribución de energía del electrón para emisión hacia adelante dentro de la SFA a través de la ec. (4.8) y la TDSE empleando el método pseudo-espectral generalizado descrito en las Refs. [49, 50]. Los parámetros de los pulsos XUV e IR son los mismos que los utilizados en la Fig. 5.1.

Para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 3T_L$ , observamos un conjunto de picos separados por la frecuencia del láser  $\omega_L$ , cuyas posiciones están dadas por la ec. (4.41). Por medio de una comparación entre las Figs. 5.1 y 5.2, vemos que las distribuciones de energía del fotoelectrón en los cálculos cuánticos (SFA y TDSE) se extienden alrededor de 0,2 u.a. más allá de los límites clásicos  $E_{low,up}$  de la ec. (4.16). Sin embargo, se encuentran en correspondencia cualitativa con los obtenidos dentro del SCM [ver Fig. 5.1]. Además, las distribuciones de energía exhiben modulaciones que están de acuerdo con el patrón de interferencia intraciclo calculado para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = T_L$ , el cual se indica por una línea gris gruesa en Fig. 5.2. En este sentido, pensar al patrón de interferencia intraciclo derivado dentro del SCM como modulador de las bandas laterales en la distribución de energía, es también válido para los cálculos cuánticos. Tanto en el SCM como en los espectros del fotoelectrón dentro de la SFA y la TDSE, se observan bandas laterales suprimidas cercanas a valores de energías  $E = 0,63, 1,03, 1,2$ , u.a. y  $1,4$  u.a., los cuales coinciden con el mínimo del patrón de

interferencia intraciclo.

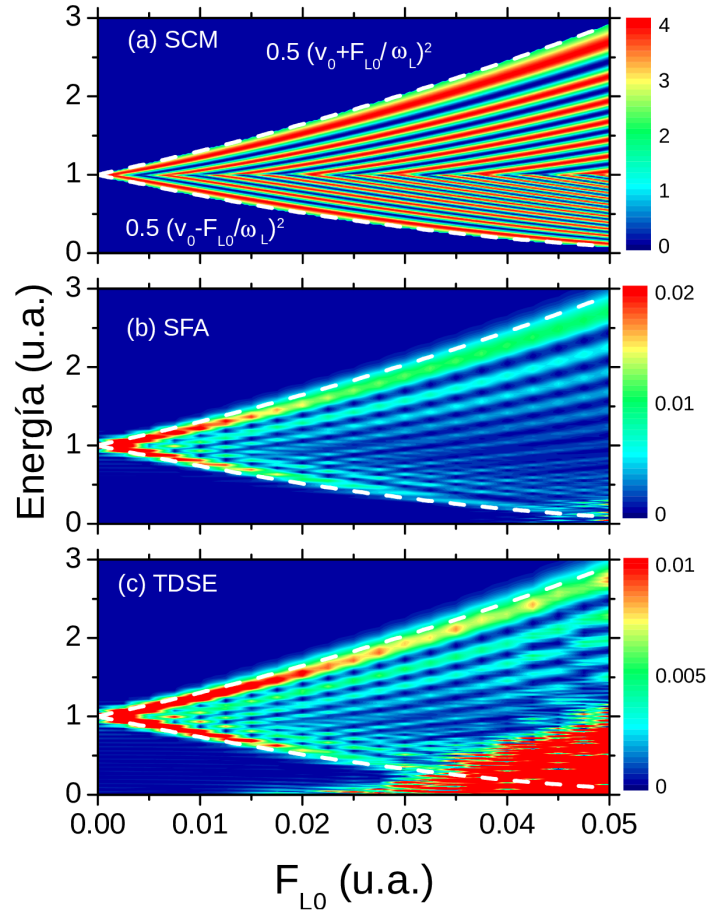
De esta manera, las interferencias *inter-* e *intraciclo* que se explican a través del SCM, también nos sirven para analizar la SFA y la TDSE, ya que el factor intraciclo que se obtiene de calcular el espectro del fotoelectrón para una duración del pulso XUV que involucre un ciclo del IR, se puede multiplicar por las bandas laterales que sean necesarias para obtener el espectrograma.



**Figura 5.3:** Espectro del fotoelectrón en la dirección de emisión hacia adelante para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  (en unidades arbitrarias) para retardo temporal  $\Delta_X = 0$ , dentro de la SFA con línea punteada negra, en línea sólida verde Bivona *et al* [62], en línea naranja Kazansky *et al* [61, 63], en línea violeta SCM y en línea de puntos la SPA. Los parámetros del láser IR son  $F_{L0} = 0,02$  u.a.,  $\omega_L = 0,05$  u.a.,  $\tau_L = 7T_L$  y parámetros del pulso XUV  $F_{X0} = 0,01$  u.a.,  $\omega_X = 1,5$  u.a., y duración  $\tau_X = T_L$ . Ambos campos son de tipo coseno.

A continuación vamos a comparar el SCM con aproximaciones basadas en la SFA, como los trabajos de Kazansky *et al* [61, 63], Bivona *et al* [62] y la soft-photon approximation (SPA) [64]. Los autores de los trabajos [61–63] utilizaron la aproximación del punto silla con el fin de obtener expresiones analíticas para el espectro del fotoelectrón, dando lugar, también, a la factorización de dos contribuciones diferentes, donde a cada contribución se les puede atribuir la interpretación de los factores *inter-* e *intraciclo* como en el SCM. La diferencia entre esos modelos y nuestra propuesta de SCM radica en que la expresión que obtenemos para la amplitud de transición es más simple y, por lo tanto, más fácil de interpretar físicamente como un problema de interferencia en el dominio temporal. Por otra parte, tenemos la teoría de la soft photon approximation (SPA), la cual deriva de la SFA en el gauge de velocidad y considera pulsos XUV e IR infinitamente largos. Esta teoría reproduce de forma satisfactoria los resultados expe-

rimentales para emisión paralela a la dirección de polarización de los campos [65–70]. En la Fig. 5.3 comparamos el SCM, la SFA, la SPA y los resultados obtenidos por aplicación de la ec. (15) de [61, 63] y la ec. (25) de [62]. Observamos que la discontinuidad en la energía ubicada en  $E_{\text{disc}} = v_0^2/2 = 1$  u.a. en el SCM, también está presente en los resultados de Kazansky *et al* y Bivona *et al*. Para la SPA observamos solamente la altura de las bandas laterales ubicadas en valores de energía del fotoelectrón dados por la ec. (4.41), las cuales se indican por puntos rojos. Es importante mencionar que la posición de estos picos fue modificada con respecto a la ec. (12) de [64] para incluir el corrimiento de los picos a causa de la energía ponderomotriz  $U_P$ . El acuerdo entre el SCM y las otras aproximaciones, incluyendo la SFA, es muy bueno dado que no sólo predice el mismo número de máximos a ambos lados de la sideband de orden cero, sino que también reproduce muy bien sus posiciones.



**Figura 5.4:** Espectro del fotoelectrón en la dirección de emisión hacia adelante para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  (en unidades arbitrarias), calculado a diferentes intensidades del láser dentro de (a) el SCM, (b) la SFA, y (c) la TDSE. La frecuencia del láser IR es  $\omega_L = 0,05$  y los parámetros del pulso XUV son  $F_{X0} = 0,01$ ,  $\omega_X = 1,5$ , y  $\tau_X = T_L$ . Ambos campos XUV e IR son del tipo coseno. En línea punteada se muestran los límites clásicos en la fotoemisión asistida por láser. El “spot” de alta intensidad mostrado a bajas energías del electrón en (c), corresponde a la ionización del pulso IR solamente.



### 5.1.2. Dependencia con la intensidad

Para investigar la dependencia del patrón de interferencia *intraciclo* con la intensidad del láser, mostramos en la Fig. 5.4 la distribución de la energía en la emisión hacia adelante dentro del SCM (a), la SFA (b), y la TDSE (c), para amplitudes del láser que van desde un valor  $F_{L0} = 0$  hasta 0,05 u.a.. En este sentido, el patrón de interferencia intraciclo mostrado en las Figs. 5.1 (a), 5.2 (a) y (b), representa un corte en la distribución de energía de las Figs. 5.4 (a), (b), y (c), para una intensidad de  $F_{L0} = 0,02$  u.a.. Los límites clásicos de la ec. (4.16),  $E_{low,up}$ , se muestran en línea punteada, y ellos delimitan exactamente el espectrograma del SCM en la Fig. 5.4 (a), como se esperaba. La Fig. 5.4 (a) muestra que la discontinuidad para el valor de energía  $E = v_0^2/2 = 1$  u.a. es claramente independiente de la intensidad del láser. Además se observa que los máximos (y mínimos) de interferencia exhiben una pendiente positiva como función de  $F_{L0}$  por encima de la discontinuidad, mientras que por debajo de ella las franjas tienen pendiente negativa. Los límites ligeramente desaparecen para el espectrograma de la SFA, mostrando franjas intraciclo características con pendiente positiva (negativa) cercanas a los límites clásicos superior (inferior), sin embargo, la discontinuidad observada en el SCM para  $E_{disc} = 1$  u.a. es menos evidente.

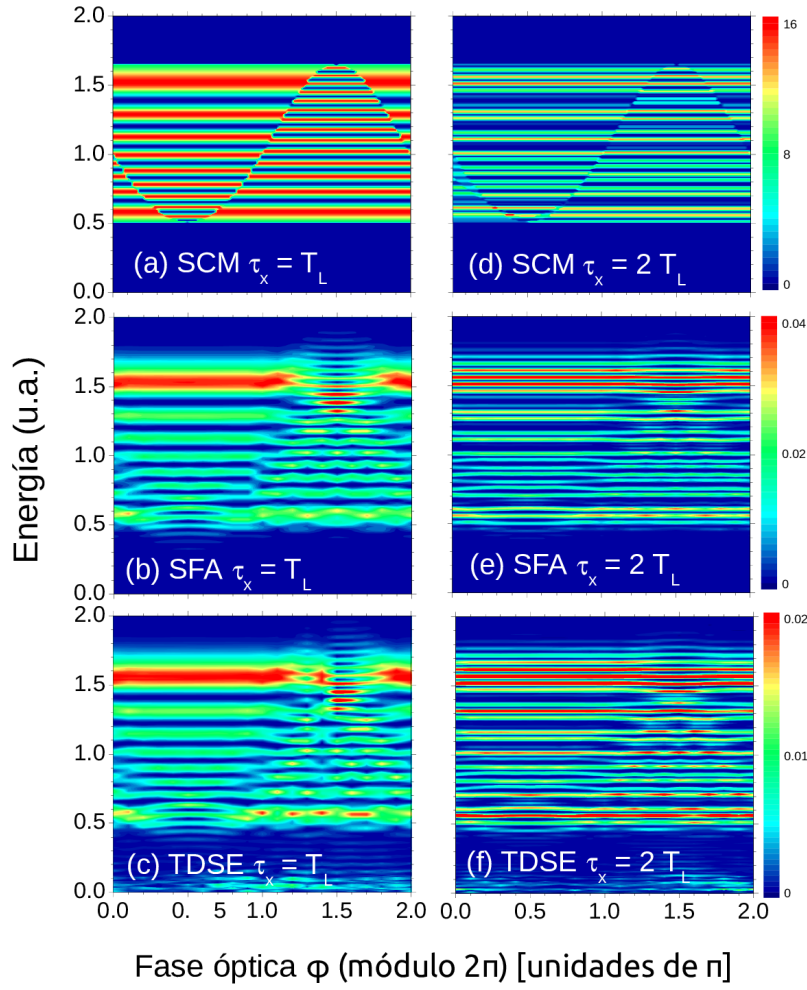
En la Fig. 5.4 (c), el cálculo de la TDSE exhibe las mismas características principales que los otros dos modelos. Además, en la región de bajas energías presenta una distribución de probabilidad considerablemente alta para valores grandes de amplitud del láser  $F_{L0}$ . El origen de esta contribución a la distribución de energía se debe a la ionización atómica por el pulso láser IR solamente, la cual no ha sido considerada en nuestro SCM y es fuertemente suprimida en la SFA. Por lo tanto, los espectrogramas de la SFA y la TDSE están de acuerdo entre sí excepto en la región donde la ionización por el campo láser se vuelve importante, y son cualitativamente similares a los cálculos obtenidos dentro del SCM.

### 5.1.3. Dependencia con el retardo temporal entre los pulsos

Hasta ahora realizamos nuestro análisis para emisión electrónica hacia adelante considerando que los campos XUV e IR no tienen un retardo temporal entre ambos, es decir,  $\Delta_X = 0$  [ver Fig. (4.9)]. Para poder revelar cómo el patrón de interferencia intraciclo cambia con el retardo temporal, variamos  $\Delta_X$  en un ciclo óptico, de modo que la fase óptica de módulo  $2\pi$  definida a través de la ec. (4.44), toma valores  $0 < \phi < 2\pi$ .

En la Fig. 5.5 (a) mostramos el patrón de interferencia intraciclo del SCM en la dirección de emisión hacia adelante como una función de la fase óptica  $\phi$ . Las franjas horizontales muestran la independencia del patrón de interferencia *intraciclo* con respecto al retardo temporal, excepto en la discontinuidad de la ec. (5.5), para valores de





**Figura 5.5:** Espectro del fotoelectrón para emisión hacia adelante para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  (en unidades arbitrarias) como función del retardo temporal  $\Delta_X$ , dentro del (a,d) SCM, (b,e) la SFA, y (c,d) la TDSE. La frecuencia del láser IR es  $\omega_L = 0,05$  u.a. y la duración  $\tau_L = 7T_L$ , y los parámetros del pulso XUV dados por  $F_{X0} = 0,01$  u.a.,  $\omega_X = 1,5$  u.a., y duración  $\tau_X = T_L$  en (a), (b), y (c), y  $\tau_X = 2T_L$  en (d), (e), y (f).

energía iguales a

$$E_{\text{disc}} = [v_0 - A(t_{Xb})]^2 / 2, \quad (5.8)$$

la cual se deriva de la ec. (4.45) para  $\theta = 0^\circ$ . Para  $\Delta_X = 0$ , la discontinuidad está situada en  $E_{\text{disc}} = v_0^2/2$ , dado que  $A(\tau_L/2 - \tau_X/2) = 0$  como se muestra en la Fig. 5.1 y a medida que  $\Delta_X$  (ó  $\phi$ ) varía, la discontinuidad sigue la forma del potencial vector del láser  $A_L(t)$ . Para los casos donde la fase toma los valores  $\phi = \pi/2$  y  $3\pi/2$ , la discontinuidad se mueve hacia los límites clásicos, desapareciendo en el espectrograma. Para el caso  $\phi = \pi/2$ , la separación entre franjas de interferencia *intraciclo* consecutivas es menor para bajas energías e incrementa a medida que la energía aumenta. Contrariamente, para  $\phi = 3\pi/2$ , la separación en energía entre máximos de interferencia intraciclo consecutivos, es más grande a bajas energías y desaparece a medida que la energía aumenta.

En las Figs. 5.5 (b) y (c) se muestran las distribuciones de energía dentro de la SFA y la TDSE, respectivamente, las cuales exhiben características similares al espectro dentro del SCM. Particularmente, la discontinuidad en  $E_{\text{disc}}$  puede observarse claramente como un salto en la distribuciones de probabilidad para los mismos valores de energía. La notable similitud entre los resultados de la SFA y la TDSE muestra, una vez más, que la SFA es muy conveniente para tratar procesos de fotoemisión asistida por láser y computacionalmente menos demandante que resolver la TDSE. Las contribuciones a bajas energías en los cálculos de la TDSE mostrados en la 5.5 (c) son debido a la ionización por el campo láser IR discutida anteriormente. Hay dos características de los espectros SFA y TDSE que merecen atención: (i) Para  $\phi \simeq \pi/2$  la distribución de energía se extiende hacia valores de energía más bajos que para otros valores de  $\phi$  ( $E \simeq 0,5$  u.a.), mientras que para  $\phi \simeq 3\pi/2$  se extiende hacia valores de energía más altos ( $E \simeq 1,5$  u.a.), y (ii) las franjas horizontales de interferencia *intraciclo* muestran una estructura que se superpone a la discontinuidad para las fases antes mencionadas.

En la Fig. 5.5 (d) se considera una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 2T_L$  donde las contribuciones de la interferencia *interciclo* son evidentes. El espectro del SCM muestra líneas horizontales correspondientes a dicha interferencia moduladas por el patrón de interferencia *intraciclo* de la Fig. 5.5 (a). La discontinuidad que presenta la modulación *intraciclo* se observa también como un salto en la probabilidad de la SFA [Fig. 5.5 (e)] y la TDSE [Fig. 5.5 (f)]. Una vez más, el acuerdo entre la SFA y la TDSE es muy bueno, con la excepción de la contribución a bajas energías que aparece en el espectrograma de la TDSE debido a la ionización por el pulso láser IR. Comparando el patrón de interferencia *intraciclo* para  $\tau_X = T_L$ , de la columna izquierda [Figs. 5.5 (a), (b), and (c)], con el patrón de interferencia para  $\tau_X = 2T_L$ , columna derecha [Figs. 5.5 (d), (e), and (f)], vemos la inter-relación entre las interferencias *intra-* e *interciclo*. El primer tipo de interferencia actúa como modulador del segundo (es decir, de las bandas laterales) cuando la duración de la ventana activa es de dos ciclos ópticos del láser. Para duraciones del pulso XUV mayores se puede observar que esta discontinuidad en la energía es menos evidente. Las distribuciones de energía *intraciclo* ( $\tau_X = T_L$ ) en las Figs. 5.1, 5.2 (a), y 5.2 (b) pueden considerarse como cortes en los interferogramas *intraciclo* de las Figs. 5.5 (a), (b), y (c), respectivamente.

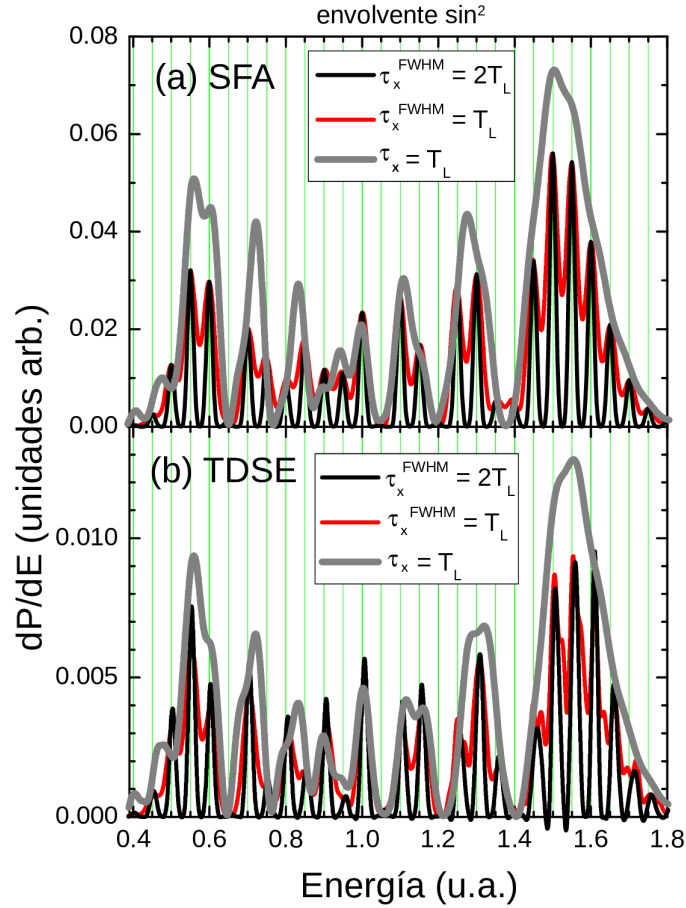
#### 5.1.4. Dependencia con la envolvente

En lo siguiente vamos a investigar el rol de la envolvente del pulso XUV,  $F_{X0}(t)$ , en la fotoemisión asistida por láser. Hasta ahora, hemos usado una envolvente trapezoidal dada por la ec. (4.43), la cual abre una ventana activa bien definida de duración casi igual a  $\tau_X$  (dado que tiene rampas al inicio y al final del pulso, con duración de un ciclo cada una  $T_X = 2\pi/\omega_X \ll T_L$ ). Ahora vamos a considerar un pulso XUV con una

envolvente seno cuadrado, de la forma

$$F_{X0}(t) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau_X}\right) = \sin^2\left(\frac{\pi t}{2\tau_X^{\text{FWHM}}}\right), \quad (5.9)$$

donde  $\tau_X^{\text{FWHM}} = \tau_X/2$  es la duración FWHM (full width at half maximum) del campo eléctrico.



**Figura 5.6:** Distribución de energía para emisión hacia adelante para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$ , calculada dentro de (a) la SFA y (b) la TDSE. La duración del láser es de  $\tau_L = 9T_L = 1130,97$  u.a. y la función envolvente del pulso XUV es de la forma  $F_{X0}(t) = \sin^2(\pi t/\tau_X)$  con  $\tau_X = 345,2$  u.a. y  $690,4$  u.a., la cual corresponde a una duración FWHM de  $\tau_X^{\text{FWHM}} = T_L$  and  $2T_L$ , respectivamente. Por completitud, también mostramos el factor intraciclo por un pulso XUV con envolvente trapezoidal de la Fig. 5.28 (curva gris). En líneas verticales se muestran las posiciones de las bandas laterales  $E_n$ , de acuerdo a la ec. (4.41).

En las Figs. 5.6 (a) and 5.6 (b) se muestra la distribución de energía del fotoelectrón para emisión hacia adelante dentro de la SFA y la TDSE, respectivamente. Para ello consideramos un pulso XUV dado por la ec. (5.9) con duración  $\tau_X^{\text{FWHM}} = T_L$ , y un campo láser dado por las ecs. (4.42) y (4.43). Se puede observar claramente en la distribución de energía del electrón que las bandas laterales son moduladas por el patrón de interferencia *intraciclo* producido por un pulso XUV trapezoidal de un ciclo  $\tau_X = T_L$ , dado por las ecs. (4.42) y (4.43). Estos resultados dan cuenta que el origen de las modulaciones de las bandas laterales son debido a la interferencia *intraciclo*,

también para el caso de la envolvente XUV del tipo  $\sin^2$ , ec. (5.9). Cuando duplicamos la duración del pulso XUV, es decir,  $\tau_X^{\text{FWHM}} = 2T_L$ , las bandas laterales son más estrechas, debido a que los ciclos ópticos involucrados en la ventana activa son el doble. Además, se puede observar una interferencia destructiva casi perfecta donde todos los mínimos de la distribución de energía son cero. Por último, el acuerdo entre los resultados cuánticos de la SFA y la TDSE, es muy bueno. Podemos concluir entonces, que la envolvente del pulso XUV juega un rol menor en la fotoemisión asistida por láser, y la mayoría de las conclusiones derivadas para un pulso XUV con envolvente trapezoidal, siguen siendo válidas para una envolvente más realista comparada a la experimental.

## 5.2. Emisión electrónica perpendicular

A continuación vamos a estudiar la emisión electrónica en dirección perpendicular al eje de polarización de los campos XUV y láser. Para un ángulo de emisión electrónica de  $\theta = 90^\circ$  o bien  $k_z = 0$  en la ec. (4.11), el momento del fotoelectrón queda definido como  $\mathbf{k} = k_\perp \mathbf{e}_\perp$ , el cual se encuentra contenido en la región *tipo perpendicular* de la Fig. 4.6 (a). Por este caso es que dicha región recibe el nombre de *tipo perpendicular* [57] y se tiene cuatro tiempos de ionización por ciclo óptico del láser. Sin pérdida de generalidad, vamos a restringir el estudio para momentos del fotoelectrón  $k_\perp \geq 0$ . Los tiempos de ionización se deducen de la ec. (4.12) y satisfacen que

$$A_L(t) = \pm \underbrace{\sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}}_{\beta_\pm(k_\perp)} \quad \text{o} \quad A_L^2(t_s) = v_0^2 - k_\perp^2, \quad (5.10)$$

donde la rama negativa de la raíz cuadrada intersecta al potencial vector  $A_L(t)$  para  $\beta_-(k_\perp) < A_{L0}$  [ver Fig. 4.7 (b)].

La ec. (5.10) se esquematiza en la Fig. 4.7 (b) donde los tiempos de ionización se calculan como intersección de las rectas  $\beta_\pm(k_\perp)$  y  $A_L(t)$ , con 2 tiempos de ionización por semiciclo óptico del láser, respectivamente. Estos se calculan de las ecs. (4.20)-(4.22) para emisión perpendicular. El dominio clásico para el momento final del electrón perpendicular al eje de polarización se deriva de la ec. (5.10) y está dado por

$$\sqrt{v_0^2 - A_{L0}^2} \leq k_\perp \leq v_0 \quad \text{siempre que} \quad v_0 \geq F_{L0}/\omega_L. \quad (5.11)$$

La ecuación para la probabilidad de ionización dada por la ec. (4.36) para  $k_z = 0$  se escribe como

$$|T_{if}^-|^2 = 4\Gamma(k_\perp)F(k_\perp \mathbf{e}_\perp)B(k), \quad (5.12)$$

donde ahora el factor intraciclo resulta:

$$F(k_\perp \mathbf{e}_\perp) = \left| f_+(k_\perp \mathbf{e}_\perp) \cos\left(\frac{\Delta S_+}{2} + \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_+(k_\perp)]\right) - f_-(k_\perp \mathbf{e}_\perp) \cos\left(\frac{\Delta S_-}{2} - \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_-(k_\perp)]\right) \right|^2. \quad (5.13)$$

De la ec. (5.10) se puede ver que  $\beta_- = -\beta_+ = \beta$ , reemplazando esto en la ec. (4.32) vemos que  $\Delta S_+ = \Delta S_- = \Delta S$ , y la ecuación para la probabilidad de ionización en

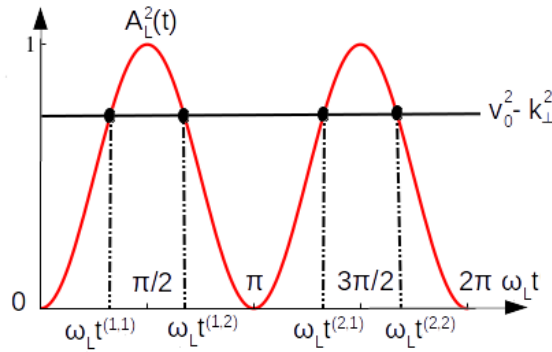
dirección perpendicular, ec. (5.12), nos queda como

$$|T_{if}^-|^2 = 4\Gamma(k_\perp) \underbrace{\frac{4}{\sqrt{1 - (\beta/A_{L0})^2}} \cos^2\left(\frac{\Delta S}{2} + \frac{\pi}{4}\right) \sin^2\left(\frac{\tilde{S}}{4}\right)}_{F(k_\perp)} \underbrace{\left[\frac{\sin(N\tilde{S}/2)}{\sin(\tilde{S}/2)}\right]^2}_{B(k_\perp)} \quad (5.14)$$

con  $\tilde{S} = (2\pi/\omega_L)(E + I_P + U_P - \omega_X)$ .

### 5.2.1. Inteferencias intra- e inter-medio-ciclo

Alternativamente, los tiempos de ionización pueden obtenerse resolviendo la ecuación de la derecha de (5.10), como la intersección de la recta  $v_0^2 - k_\perp^2$  con el potencial vector del láser al cuadrado  $A_L^2(t)$ . Los tiempos de ionización que verifican esta ecuación se muestran esquemáticamente en la Fig. 5.7 para un ciclo óptico del láser, e indican que la solución de la ecuación tiene periodicidad  $\pi/\omega_L$ . El dominio clásico para el momento del fotoelectrón perpendicular al eje de polarización coincide con la ec. (5.11).



**Figura 5.7:** Tiempos de emisión como resultado de la intersección entre las rectas  $v_0^2 - k_\perp^2$  y  $A_L^2(t)$  en un ciclo.

De acuerdo a la Fig. 5.7, existen dos tiempos de ionización por semiciclo  $m$ , los cuales se pueden describir en términos de los tiempos de ionización anterior y posterior dados por  $t^{(m,1)}$  y  $t^{(m,2)}$ , respectivamente, y tienen la forma

$$t^{(m,\nu)} = t^{(m,1)} + \frac{\pi}{\omega_L}(m-1) \text{ con } \nu = 1, 2, \quad (5.15)$$

que de la ec. (5.10) éstos se calculan como

$$t^{(1,1)} = \frac{1}{\omega_L} \sin^{-1} \left[ \sqrt{(v_0^2 - k_\perp^2)/A_{L0}^2} \right] \quad (5.16)$$

$$t^{(1,2)} = \frac{\pi}{\omega_L} - t^{(1,1)}. \quad (5.17)$$

Por lo tanto, la suma sobre los tiempos de emisión en la ec. (4.23) se puede realizar alternativamente hasta  $2N$

$$T_{if}^- = \sum_{m=1}^{2N} \sum_{\nu=1}^2 g(\mathbf{k}, t) \quad (5.18)$$

donde  $g(\mathbf{k}, t)$  está dada por la ec. (4.25) con la acción  $S(t)$  de la ec. (4.31) para  $k_z = 0$ , escrita como

$$S(t^{(j,\alpha)}) = \left( \frac{k_z^2}{2} + I_P + \frac{F_{L0}^2}{4\omega_L^2} - \omega_X \right) t^{(m,\nu)} - \frac{F_{L0}^2}{8\omega_L^3} \sin(2\omega t^{(m,\nu)}). \quad (5.19)$$

Para poder factorizar el elemento dipolar en la ec. (5.18) necesitamos evaluarlo en los tiempos de emisión. De la ec. (4.28) tenemos que

$$d_z(k_\perp \mathbf{e}_\perp + \mathbf{A}_L(t)) = -\frac{i2^{7/2}}{\pi} (2I_P)^{5/4} \frac{A_L(t)}{[v_0^2 + 2I_P]^3} \quad (5.20)$$

para emisión perpendicular, el cual evaluado en dos semiciclos consecutivos resulta

$$\begin{aligned} d_z(k_\perp \mathbf{e}_\perp + \mathbf{A}_L(t^{(m,\nu)})) &= \frac{\sqrt{2}A_{L0}}{i\pi\omega_X^3} \sin(\omega_L t^{(m,\nu)}) \\ &= -d_z(k_\perp \mathbf{e}_\perp + \mathbf{A}_L(t^{(m+1,\nu)})). \end{aligned} \quad (5.21)$$

Esta última ecuación nos dice que el elemento dipolar cambia de signo en cada semiciclo  $m$ . Incluyendo esto como un factor  $(-1)^m$ , la probabilidad de ionización de la ec. (2.88), se escribe como

$$|T_{if}^-|^2 = \Gamma'(k_\perp) \left| \sum_{m=1}^{2N} \sum_{\nu=1}^2 (-1)^m \exp \left[ iS(t^{(m,\nu)}) + i\frac{\pi}{4} \text{sgn}[\ddot{S}(t^{(m,\nu)})] \right] \right|^2 \quad (5.22)$$

donde  $\Gamma'(k_\perp)$  agrupa varios factores

$$\Gamma'(k_\perp) = \frac{4F_{X0}^2}{\pi\omega_X^6\omega_L} \frac{\sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}}{\sqrt{k_\perp^2 - v_0^2 + A_{L0}^2}}. \quad (5.23)$$

Siguiendo los mismos pasos que en el Apéndice B, se llega a que la matriz de transición se puede escribir como

$$|T_{if}^-|^2 = 4\Gamma'(k_\perp) \underbrace{\cos^2 \left( \frac{\Delta S}{2} + \frac{\pi}{4} \right)}_{G(k_\perp)} \underbrace{\left[ \frac{\sin(N\tilde{S}/2)}{\cos(\tilde{S}/4)} \right]^2}_{H(k_\perp)}. \quad (5.24)$$

donde  $\Delta S$  es la misma que aparece en la ec. (5.14), es decir, es equivalente a  $\Delta S_+ =$

$\Delta S_-$ , y está dada por

$$\Delta S = \frac{\tilde{S}}{2} \left[ \frac{2}{\pi} \sin^{-1} \left| \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2} / A_{L0} \right| - 1 \right] - \frac{1}{2\omega_L} \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2} \sqrt{A_{L0}^2 - (v_0^2 - k_\perp^2)} \quad (5.25)$$

Las ecuaciones (5.14) y (5.24) muestran que el espectro del fotoelectrón puede factorizarse de dos formas distintas. Por una parte, (i) tenemos la contribución de los bien conocidos factores intra- e interciclo definidos por  $F(k_\perp)$  y  $B(k_\perp)$  provenientes de la contribución de cuatro trayectorias en el mismo ciclo óptico, y de trayectorias emitidas en distintos ciclos, respectivamente. Por otra parte, (ii) la ec. (5.24) se escribe en términos de unas nuevas interferencias que involucran pares de trayectorias del electrón que nacen en un mismo semiciclo (interferencia *intra-medio-ciclo*) y trayectorias del electrón emitidas en distintos semiciclos (interferencia *inter-medio-ciclo*), a través de los factores  $G(k_\perp)$  y  $H(k_\perp)$ , respectivamente, en la ec. (5.24). Esto significa que mientras en (i) las contribuciones coherentes de los  $N$  ciclos ópticos diferentes se dividen en patrones de interferencia intra- e interciclo, en (ii) la interferencia de  $2N$  semiciclos da lugar a factores intra-medio- e inter-medio-ciclo. Las dos factorizaciones posibles para la probabilidad de emisión dan lugar a los mismos resultados, es decir,  $F(k_\perp)B(k_\perp) = G(k_\perp)H(k_\perp)$ . En términos de estas nuevas interferencias vamos a describir el espectro de energía del fotoelectrón.

En el límite de pulso XUV infinitamente largo ( $N$  muy grande) tenemos que

$$\frac{\sin(N\tilde{S}/2)}{\cos(\tilde{S}/4)} \xrightarrow{N \rightarrow \infty} \sum_l \delta(\tilde{S}/4 + \pi/2 - \ell\pi) \quad (5.26)$$

y la probabilidad de ionización ocurre sólo cuando

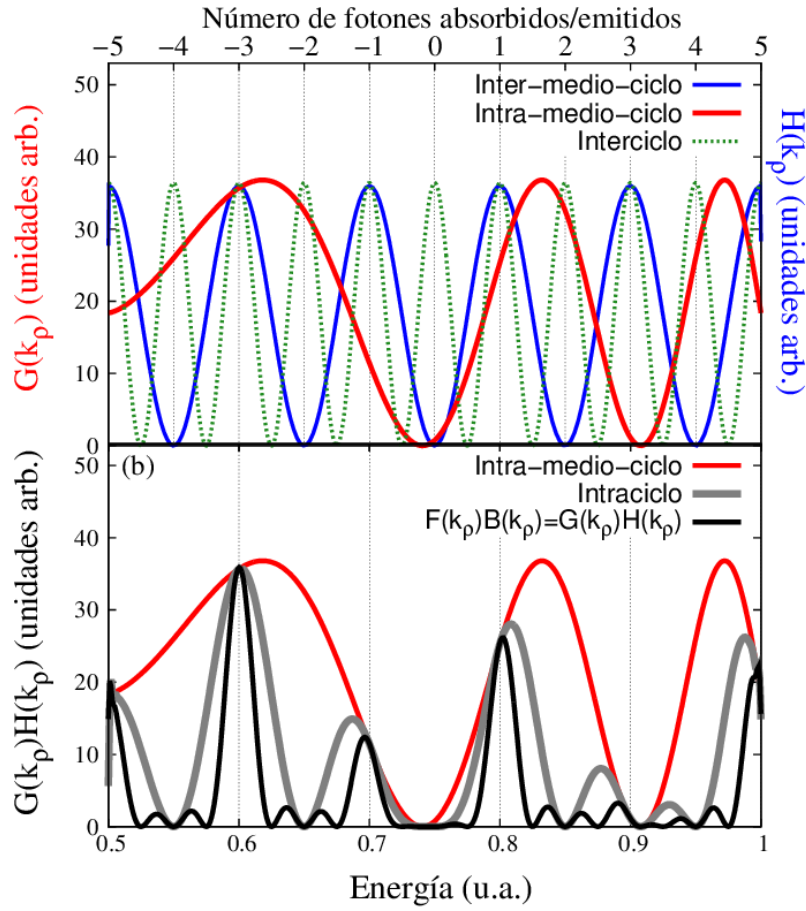
$$E_\ell = \omega_X + (2\ell + 1)\omega_L - I_P - U_P. \quad (5.27)$$

con  $\ell$  un número entero cualquiera. Es interesante notar que la diferencia de energía entre dos bandas laterales consecutivas es  $2\omega_L$  y no  $\omega_L$ , como sucedía en la emisión electrónica paralela al eje de polarización estudiada en la sección 5.1 [56].

De la ec. (5.27) tenemos que solamente un número impar  $(2\ell + 1)$  de fotones del láser pueden ser absorbidos o emitidos, juntos con la absorción de un fotón del XUV. Como consecuencia, la absorción de un solo fotón del XUV (en ausencia de absorción/emisión de fotones IR) está prohibida. El patrón de interferencia intra-medio-ciclo muestra pocas oscilaciones con máximos que dependen de la energía cinética del electrón, los cuales pueden calcularse fácilmente a través de  $\Delta S = (2q - 1/2)\pi$ , con  $q$  un número entero.

En la Fig. 5.8 (a) se presentan las funciones intra-medio- e inter-medio-ciclo,  $G(k_\perp)$  y  $H(k_\perp)$ , en función de la energía en línea de color rojo y azul, respectivamente, para





**Figura 5.8:** Patrón de interferencia siguiendo el SCM para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  y una duración del pulso XUV  $\tau_X = 2T_L$ . (a) Factor intra-medio-ciclo dado por  $G(k_\perp)$  (en línea roja), factor inter-medio-ciclo dado por  $H(k_\perp)$  (en línea azul). (b) Factor intraciclo dado por  $F(k_\perp)$  (en línea gris) y patrón de interferencia total  $F(k_\perp)B(k_\perp) = G(k_\perp)H(k_\perp)$  (en línea negra). En líneas verticales se muestran las posiciones de las bandas laterales  $E_l$  de la ec. (5.27). Los parámetros del láser IR son  $F_{L0} = 0,05$  u.a., y  $\omega_L = 0,05$  u.a., y la frecuencia del XUV es  $\omega_X = 1,5$  u.a..

un pulso XUV con duración  $\tau_X = 2T_L$ . Observamos que el factor intra-medio-ciclo  $G(k_\perp)$  exhibe oscilaciones no periódicas en la energía final del fotoelectrón, mientras que el factor inter-medio-ciclo  $H(k_\perp)$  es periódico en la energía con picos separados por  $2\omega_L$  en valores dados por la ec. (5.27).

En la Fig. 5.8 (b), graficamos el patrón de interferencia total para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = 2T_L$  y el factor intraciclo  $F(k_\perp)$ , en línea negra y gris, respectivamente. Para una mejor comparación, en la Fig. 5.8 (b) reproducimos en línea roja el factor de intra-medio-ciclo  $G(k_\perp)$  de la Fig. 5.8 (a). Todos los factores de interferencia han sido reescalados para una mejor visualización de los resultados. La multiplicación de ambos factores *intra-medio* e *inter-medio-ciclo*, es decir,  $G(k_\perp)H(k_\perp)$ , se muestra en la Fig. 5.8 (b), donde observamos cómo el patrón de interferencia intra-medio-ciclo [ $G(k_\perp)$ ] modula del patrón de interferencia intraciclo [ $F(k_\perp)$ ], y éste a su vez modula las bandas laterales (patrón de interferencia inter-ciclo).

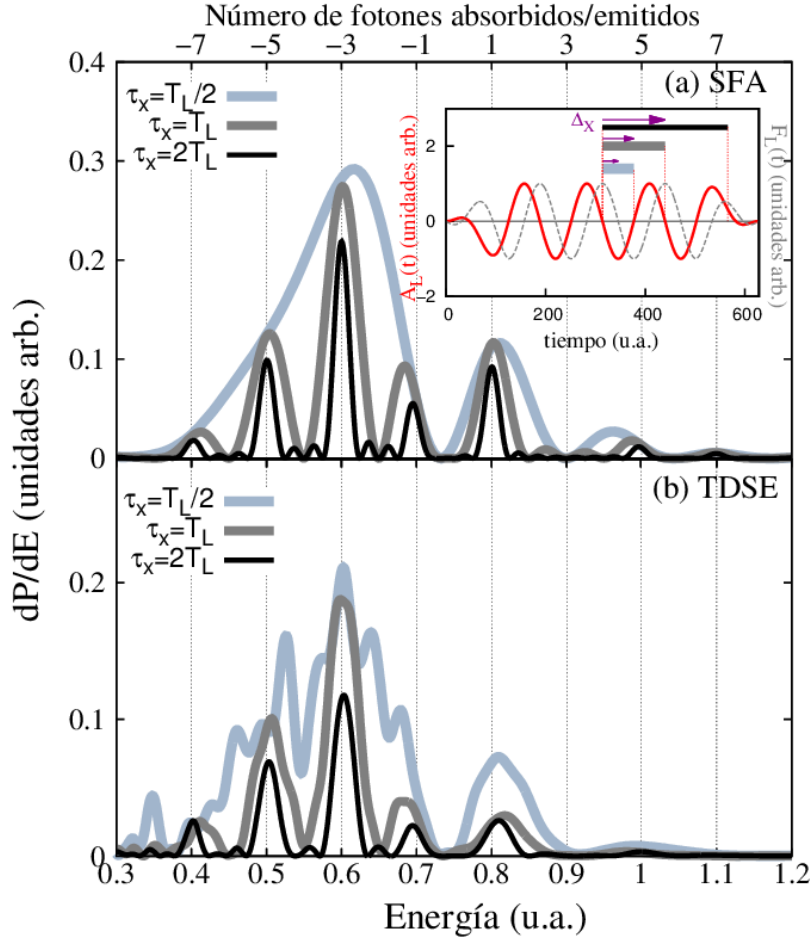
Se observan pequeñas desviaciones de los distintos máximos del patrón de interferencia intraciclo en la Fig. 5.8 (b), con respecto a la ecuación para conservación de la energía [ec. (5.27)]. El ancho de los picos está involucrado en la explicación de estas pequeñas desviaciones: para la distribución intraciclo ( $\tau_X = T_L$ ), el factor  $H(k_\perp)$  en la ec. (5.14) es el responsable de las bandas laterales centradas en valores de energías  $E_\ell$  [de acuerdo con la ec. (5.27)] con ancho igual a  $\Delta E = 2\omega_L/N$ . El factor envolvente intra-medio-ciclo  $G(k_\perp)$  modula el factor  $H(k_\perp)$ , desplazando ligeramente estos picos. Para energías donde  $G(k_\perp)$  es una función creciente, los picos se desplazan hacia la derecha (energías más altas), mientras que si  $G(k_\perp)$  es una función decreciente, se mueven hacia la izquierda (energías más bajas). Cuando el pulso XUV se vuelve más largo, es decir, a  $N$  más grande, las bandas laterales son más estrechas, y los picos se desplazan menos. Como hemos señalado antes, en el límite  $N \gg 1$ , las bandas laterales se vuelven funciones delta y, de esta manera, sus posiciones no se ven afectadas por la envolvente intra-medio-ciclo.

Por otro lado, la ec. (5.24) muestra que el espectro del fotoelectrón puede pensarse como un patrón interciclo, con picos en posiciones dadas por  $E_n = n\omega_L + \omega_X - I_P - U_P$ , modulado por el patrón de interferencia intraciclo, dado por el factor  $F(k_\perp)$ . Por lo tanto, la falta de bandas laterales de orden par, provienen del factor  $\sin^2(\tilde{S}/4)$  en el factor intraciclo  $F(k_\perp)$  [ver Eq. (5.14)]. El factor  $\sin^2(\tilde{S}/4)$  refleja el hecho de que el elemento dipolar dado por la ec. (4.28) tiene signo opuesto para dos semiciclos consecutivos, dentro un mismo ciclo óptico del láser. Esto último da lugar a una interferencia destructiva entre dos trayectorias del electrón del primer semiciclo y las correspondientes al segundo semiciclo durante cada ciclo óptico del láser que involucre la duración del pulso XUV. Contrariamente a lo que sucede para emisión electrónica en dirección paralela al eje de polarización, donde la ionización durante uno de los semiciclos contribuye a la emisión en una dirección (hacia atrás o hacia adelante), mientras que el otro semiciclo contribuye a la dirección opuesta [ver sección 5.1]. Como consecuencia no se produce ninguna interferencia y todos los picos están separados por  $\omega_L$ .

### 5.2.2. Comparación con otros modelos

Hasta el momento, hemos mostrado cómo la probabilidad de emisión electrónica perpendicular al eje de polarización de los campos dentro del SCM puede factorizarse en dos contribuciones diferentes y de dos formas distintas: (i) en interferencias *intra-* e *interciclo* [ec. (5.24)] y (ii) en interferencias (nuevas) *intra-medio-* e *inter-medio-ciclo* [ec. (5.14)]. Para poder comparar estos resultados con los correspondientes a los cuánticos dentro de la SFA [ec. (4.8)] y la TDSE empleando el método pseudo-espectral generalizado descrito en las Refs. [49, 50], modelamos los campos XUV y láser IR a través de las ecs. (4.42) y (4.43). La ventana activa debe estar en fase con el potencial

vector, por lo tanto, utilizamos la fase óptica de módulo  $2\pi$  definida a través de la ec. (4.44) como la fase del inicio del pulso XUV con respecto al potencial vector  $\mathbf{A}_L(t)$ .



**Figura 5.9:** Espectro del fotoelectrón para emisión en la dirección perpendicular para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$ , calculados dentro de (a) la SFA y b) la TDSE, para diferentes duraciones de pulso XUV  $\tau_X = T_L/2$  (en línea gris claro),  $T_L$  (en línea gris grueso) y  $2T_L$  (en línea negra), y retardo temporal  $\Delta_X = T_L/4, T_L/2$ , y  $T_L$ . Los parámetros XUV e IR son los mismos que en la Fig. 5.8 y  $F_{X0} = 0,05$  u.a.. En líneas verticales se muestran las posiciones de las bandas laterales de acuerdo a la ec (5.27). Las distribuciones de energía del fotoelectrón han sido reescaladas para una mejor visualización.

Vamos a considerar frecuencias de los campos IR y XUV  $\omega_L = 0,05$  u.a. y  $\omega_X = 30\omega_L = 1,5$  u.a. respectivamente, duración del láser IR  $\tau_L = 5T_L$  y pulsos XUV de diferentes duraciones  $\tau_X = T_L/2, T_L$ , y  $2T_L$  (es decir,  $N = 1/2, 1$  y  $2$ ). En las Figs. 5.9(a) y (b) presentamos el espectro de energía del fotoelectrón considerando distintos retardos temporales del pulso XUV con respecto al campo láser  $\Delta_X = T_L/4, T_L/2$ , y  $T_L$ , de manera que las fases ópticas sean las mismas  $\phi = \pi$ .

En las Figs. 5.9 (a) y (b), se muestran los resultados de la SFA y la solución numérica de la TDSE, respectivamente, para los mismos parámetros de los pulsos XUV e IR utilizados en la Fig. 5.8. El acuerdo entre los cálculos dentro del SCM [Fig. 5.8] y los correspondientes dentro de la SFA y TDSE [Figs. 5.9 (a) y (b)] es cualitativamente

bueno. Esto pone de manifiesto que el efecto del potencial de Coulomb en el espectro de energía para la emisión electrónica en dirección perpendicular es muy pequeña.

La interferencias *intra-medio-ciclo* e *intraciclo* corresponden a distribuciones de energía del fotoelectrón con duraciones del pulso XUV dadas por  $\tau_X = T_L/2$  y  $T_L$ , respectivamente. Como predice la ec. (5.14), la interferencia *intra-medio-ciclo* actúa como modulador de la interferencia *intraciclo*, que a su vez modula las bandas laterales originadas por un pulso XUV más largo,  $\tau_X = 2T_L$  [Figs. 5.9 (a) y 5.9 (b)]. Cuando la duración del pulso XUV involucra varios períodos del láser,  $\tau_X = 2T_L$ , las posiciones de las bandas laterales obtenidas por los cálculos cuánticos (SFA y TDSE) en las Figs. 5.9 (a) y 5.9 (b), coinciden con los valores de energía de la ec. (5.27) dentro del SCM. Por otra parte, los espectros de energía para los cálculos cuánticos SFA y TDSE se extienden más allá de los límites clásicos  $E_1 = 0,5$  u.a. y  $E_2 = 1$  u.a. dados por la ec. (4.17). El espectro de la TDSE para el caso de un pulso XUV de menor duración [Fig. 5.9 (b)], presenta estructuras adicionales relacionadas con la emisión electrónica directa producida por ionización del campo láser IR, la cual no está considerada en la SFA ni en el SCM. Esto se discute más adelante.

### 5.2.3. Dependencia con el retardo temporal entre los pulsos

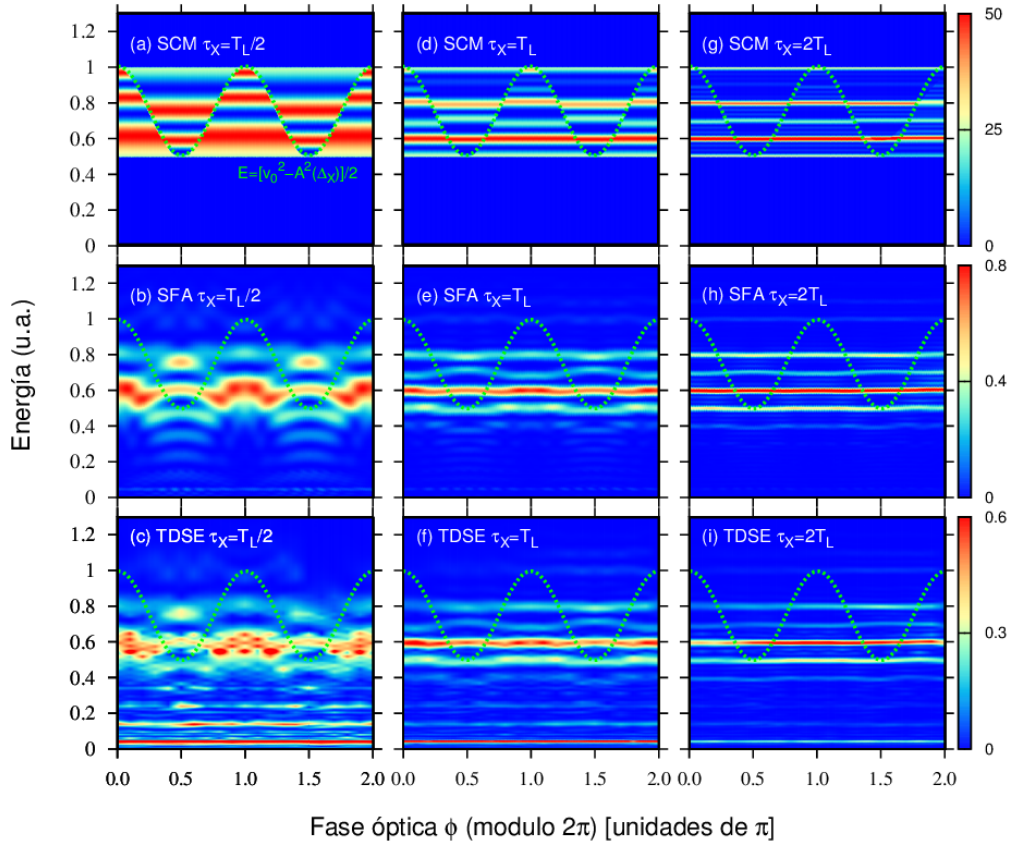
Hasta ahora, hemos realizado nuestro análisis para emisión electrónica perpendicular a la dirección de polarización de los campos considerando una fase óptica  $\phi = \pi$ , ya que  $N_L$  es impar en la ec. (4.44). Para poder develar cómo cambia el patrón de interferencia intraciclo en función del retardo temporal variamos  $\Delta_X$  en un ciclo óptico, de modo que  $\phi$  toma valores desde 0 a  $2\pi$ .

En la Fig. 5.10 (a) se muestra el patrón de interferencia intra-medio-ciclo calculado para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = T_L/2$  dentro del SCM como una función de la fase óptica. Las franjas horizontales muestran que el patrón de interferencia intra-medio-ciclo es independiente del retardo temporal, excepto en la discontinuidad, para valores de energía iguales a

$$E_{\text{disc}} = \frac{1}{2} [v_0^2 - A^2(t_{Xb})], \quad (5.28)$$

la cual se deduce de la ec. (4.45) para  $\theta = 90^\circ$ . Para  $\phi = 0$ , la discontinuidad se sitúa en  $E_{\text{disc}} = v_0^2/2$  que coincide con el límite clásico  $E_2$  dado por la ec. (4.17).

La Fig. 5.10 (a) nos muestra que a medida que  $\phi$  (ó  $\Delta_X$ ) varía, la discontinuidad sigue la forma del cuadrado del potencial vector del láser, lo que significa que la discontinuidad es  $\pi$ -periódica en  $\phi$ , a diferencia de la periodicidad  $2\pi$  que presentaba el espectrograma en función del retardo temporal para emisión paralela en la Fig. 5.5 [56]. Para los valores de fase  $\phi = 0, \pi$ , y  $2\pi$ , la discontinuidad se sitúa en  $E_2 = 1$  u.a.,



**Figura 5.10:** Espectro del fotoelectrón para emisión en dirección perpendicular para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  (en unidades arbitrarias), calculados en función del retardo temporal  $\Delta_X$ , dentro del SCM [(a), (d), y (g)], la SFA [(b), (e), y (h)], y la TDSE [(c), (f), y (i)]. La duración del pulso XUV es  $\tau_X = T_L/2$  [(a)-(c)], y  $\tau_X = T_L$  [(d)-(f)], y  $\tau_X = 2T_L$  [(g)-(i)]. Los otros parámetros XUV e IR son los mismos que en las figuras anteriores. En línea de puntos mostramos los valores de energía de la ec. (5.28). Las distribuciones de energías del fotoelectrón han sido reescaladas para una mejor visualización.

mientras que para  $\phi = \pi/2$ , y  $3\pi/2$ , lo hace en  $E_1 = 0,5$  u.a. de la ec. (4.17), perdiendo entidad en ambos casos.

Las distribuciones de energía para la SFA y la TDSE, en las Figs. 5.10 (b) y (c), presentan características similares a las del SCM, pero con una estructura periódica más abundante. Curiosamente, la discontinuidad en  $E_{\text{disc}}$  es reflejada como un salto en las distribuciones de probabilidad para los mismos valores de energía. La notable semejanza entre la SFA (la cual es computacionalmente menos demandante) y la solución *ab initio* de la TDSE, muestra, una vez más, que la SFA es muy apropiada para explicar y reproducir el comportamiento de los electrones en los procesos LAPE. Las contribuciones a bajas energías en los cálculos de la TDSE mostrados en las Figs. 5.10 (c), (f) e (i) son debido a la ionización IR, como se discutió anteriormente.

Para una duración  $\tau_X = T_L$  en la Fig. 5.10 (d), el espectro SCM muestra líneas horizontales que resultan de multiplicar el factor intra-medio-ciclo  $G(k_\perp)$  con el factor  $\sin^2(\tilde{S}/4)$ , según la ec. (5.24). De la misma forma, para el caso donde  $\tau_X = 2T_L$ , Fig. 5.10

(g), el espectro del SCM muestra líneas horizontales correspondientes a la interferencia *interciclo* modulada por la interferencia *intraciclo* de la Fig. 5.10 (d). Observamos que no hay discontinuidad en el factor  $G(k_\perp)$  para los valores de energía  $E_\ell$ , dados por la ec. (5.27). Por lo tanto, a medida que las bandas laterales se hacen más estrechas, que es equivalente a decir que la duración del pulso XUV aumenta, la discontinuidad en la modulación intraciclo desaparece. La continuidad en los factores intraciclo e intra-medio-ciclo está relacionada con el hecho de que  $\Delta S|_{E>E_{\text{disc}}} + \Delta S|_{E<E_{\text{disc}}} = \tilde{S}/2$ , donde  $\Delta S|_{E>E_{\text{disc}}}$  ( $\Delta S|_{E<E_{\text{disc}}}$ ) es la acción acumulada calculada a energías mayores (inferiores) a la de la discontinuidad  $E_{\text{disc}}$ . Por lo tanto, la evaluación de  $\cos^2(\Delta S/2 + \pi/4)$  da exactamente el mismo resultado en  $E_\ell$ , independientemente de la fase  $\phi$ . Una vez más, de los espectrogramas de la SFA mostrados en las Figs. 5.10 (e) y (h) y los correspondientes cálculos de la TDSE, Figs. 5.10 (f) e (i), están en correspondencia entre sí, con la excepción de la contribución a bajas energías debido a la ionización por el pulso láser IR solamente, el cual es fuertemente suprimido en el cálculo de la SFA.

Comparando los patrones de interferencia intra-medio-ciclo para  $T_L/2$  [Figs. 5.10 (a), (b), y (c)], intraciclo para  $\tau_X = T_L$  [Figs. 5.10 (d), (e), y (f)] y total para  $\tau_X = 2T_L$  [Figs. 5.10 (g), (h), y (i)], corroboramos la predicción del SCM de que el patrón de interferencia intra-medio-ciclo (espectrograma para  $\tau_X = T_L/2$ ) funciona como modulador del patrón intraciclo (espectrograma para  $\tau_X = T_L$ ), y a su vez del patrón de interferencia interciclo o bandas laterales.

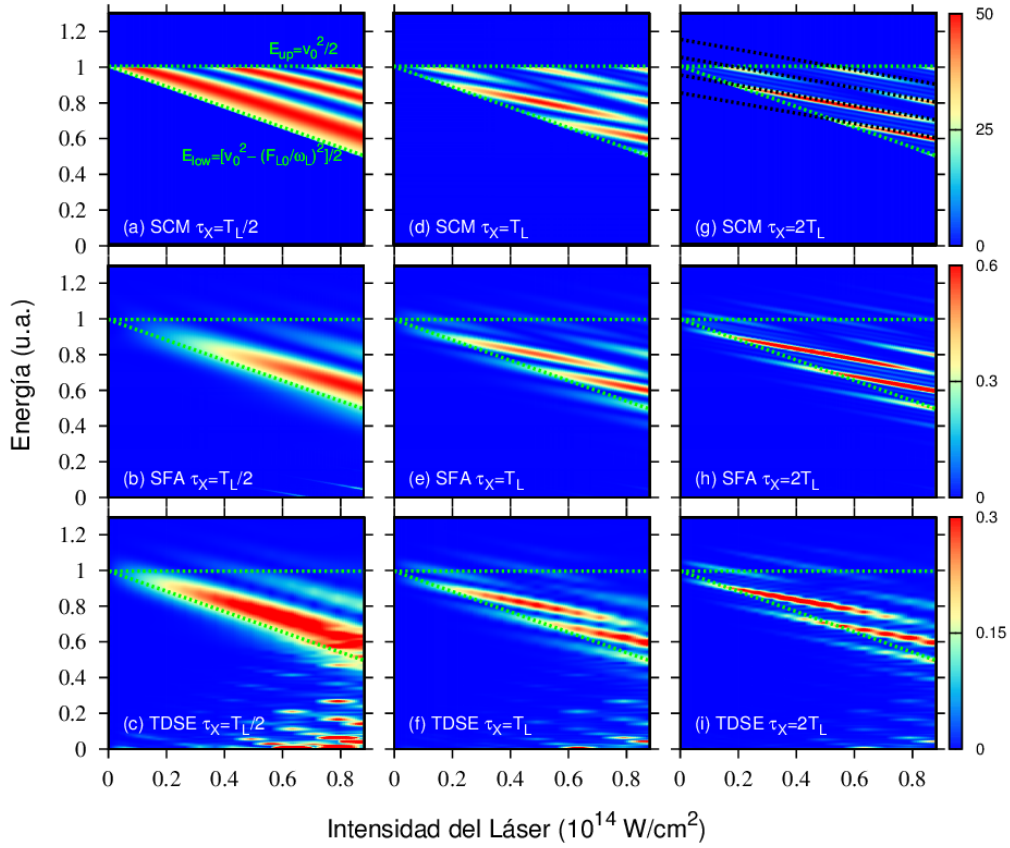
#### 5.2.4. Dependencia con la intensidad del campo láser

En la Fig. 5.11, mostramos el espectrograma del fotoelectrón para emisión perpendicular dentro del SCM, la SFA, y la TDSE, en función de la intensidad del campo láser, desde  $I_L = 0$  hasta  $8,8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  ( $F_{L0} = 0,05 \text{ u.a.}$ ). Analizamos la distribución de energía para diferentes duraciones de pulso XUV.

Los espectros de energía para  $\tau_X = T_L/2$ ,  $T_L$ , y  $2T_L$  en las Figs. 5.8 y 5.9 son cortes de la Fig. 5.11 para una intensidad  $I_L = 8,8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Los límites clásicos  $E_1$  y  $E_2$  de la ec. (4.17), dibujados en líneas de puntos, delimitan exactamente el espectrograma del SCM de las Figs. 5.11 (a), (d) y (g), como se esperaba. Para el caso en que  $\tau_X = T_L/2$  (primera columna), las Figs. 5.11 (a), (b), y (c) presentan franjas de interferencia intra-medio-ciclo con pendiente negativa. El valor de esta pendiente para los máximos puede calcularse numéricamente a partir de la ecuación trascendental para la energía  $\Delta S = (2q - 1/2)\pi$  con  $q = -2, -1, 1, 2, \dots$  [ver Ec. (5.25)].

Cuando la duración del pulso XUV es de  $\tau_X = T_L$  (segunda columna de la Fig. 5.11), observamos en las Figs. 5.11 (d-f) que los patrones de interferencia intra-medio-ciclo están modificados por franjas de distribución de probabilidad cero o cercanas a cero. Esto se debe a los ceros del factor  $\sin(\tilde{S}/4)$  en el factor intraciclo  $F(k_\perp)$ , es decir,





**Figura 5.11:** Espectro del fotoelectrón para emisión en dirección perpendicular para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$  (en unidades arbitrarias), calculados a diferentes intensidades de campo láser, dentro del SCM (a, d, y g), la SFA (b, e, y h), y la TDSE (c, f, y i). La duración del pulso XUV es de  $\tau_X = T_L/2$  (a-c),  $T_L$  (d-f), y  $\tau_X = 2T_L$  (g-i). Los otros parámetros XUV e IR son iguales a las figuras anteriores. En línea verde punteada se muestran los límites clásicos y en línea negra punteada, se muestran los valores  $E_\ell$  dados por la ec. (5.27). Las distribuciones de energía del fotoelectrón han sido reescaladas para una mejor visualización.

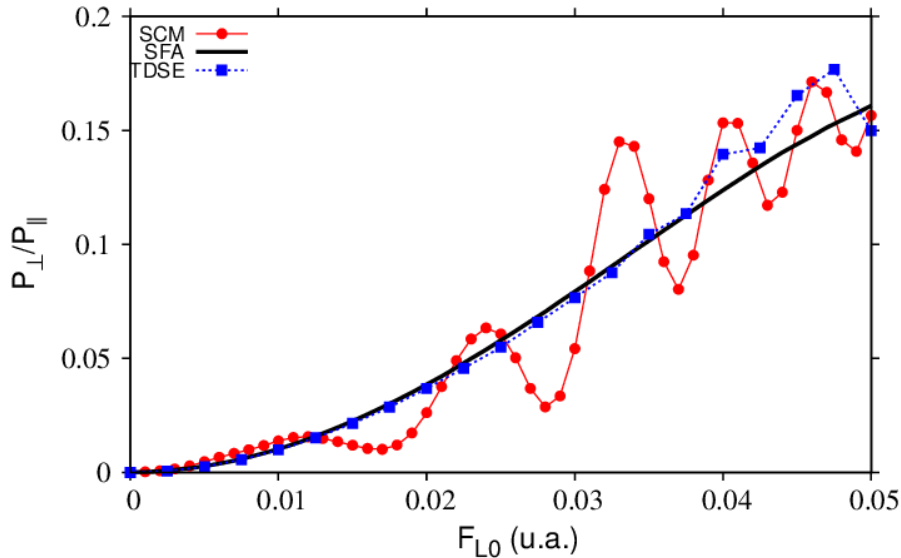
a  $\tilde{S}/4 = n\pi$ , que da como resultado que  $E = \omega_X - I_P - U_P + 2n\omega_L$ .

La pendiente de estos mínimos es  $-U_P/I_L = -(2\omega_L)^{-2}$  y la diferencia de energía entre mínimos (y máximos) consecutivos es de  $2\omega_L$ . Para el caso de  $\tau_X = 2T_L$  (tercera columna de la Fig. 5.11), vemos en las Figs. 5.11 (g-i) que las franjas de distribución de probabilidad se vuelven más delgadas debido a la interferencia (destruccion) del factor inter-medio-ciclo para valores de energía diferentes de la conservación de la energía, ec. (5.27). Además, cuando comparamos la posición de los máximos con la ec. (5.27), las cuales se indican mediante líneas punteadas de color negro en la Fig. 5.11 (g), vemos un excelente acuerdo. Observamos que el dominio de los espectrogramas de la SFA y la TDSE (segunda y tercera fila de la Fig. 5.11) se extienden más allá de los límites clásicos. Sin embargo, las franjas características *intra-medio-* e *intraciclo* con pendiente negativa derivadas del SCM se reproducen muy bien en los cálculos cuánticos.

En las Figs. 5.11 (c), (f), y (i), los cálculos de la TDSE muestran una distribución de probabilidad alta para valores grandes de intensidad del láser  $I_L \gtrsim 0,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  en

la región de bajas energías. Esta distribución no se superpone a la ionización producida por un pulso XUV asistida por láser, cuando la duración del pulso XUV  $\tau_x \geq T_L$  pero sí para  $\tau_x = T_L/2$ . Sospechamos que estas estructuras son las responsables de aquellas que aparecen en la Fig 5.9(b). La fuente de este incremento en la probabilidad se debe a la ionización atómica por el pulso del láser IR solamente, que no ha sido considerada en nuestro SCM y que está fuertemente suprimida en la SFA.

Por lo tanto, a excepción de la región donde la ionización por el campo láser IR se vuelve importante, los espectrogramas de la SFA y la TDSE muestran un muy buen acuerdo entre ellos y se asemejan cualitativamente a los cálculos SCM. Las bandas laterales resultantes se vuelven más estrechas y pronunciadas a medida que la duración del pulso XUV aumenta, exhibiendo el hecho de que el patrón de interferencia intra-medio-ciclo modula el patrón de interferencia intraciclo, que, a su vez, modula las bandas laterales (patrón de interferencia interciclo). Reescalamos los espectros fotoelectrónicos en las Figs. 5.11 (c), (f), e (i) con factores 1:1, 1:2, y 1:4, respectivamente, para mantener las interferencias LAPE (*intra-medio-*, *intra-*, e *interciclo*) comparables. Se puede observar que las estructuras a bajas energías disminuyen a medida que el pulso XUV se vuelve largo. La forma correcta de ver esto es que la proporción de la contribución de la ionización IR a la ionización total (LAPE) disminuye a medida que la duración del pulso XUV es mayor.



**Figura 5.12:** Cociente de probabilidades de emisión perpendicular y paralela como función de la amplitud del campo láser para ionización del átomo de hidrógeno desde el estado fundamental  $1s$ , dentro del SCM (en línea roja con círculos), la SFA (en línea sólida negra) y la TDSE (en línea de puntos con cuadrados).

De los análisis llevados a cabo en las Figs. 5.4 y 5.11 vemos que la emisión depende fuertemente de la intensidad del láser. Por eso es necesario analizar la contribución de la



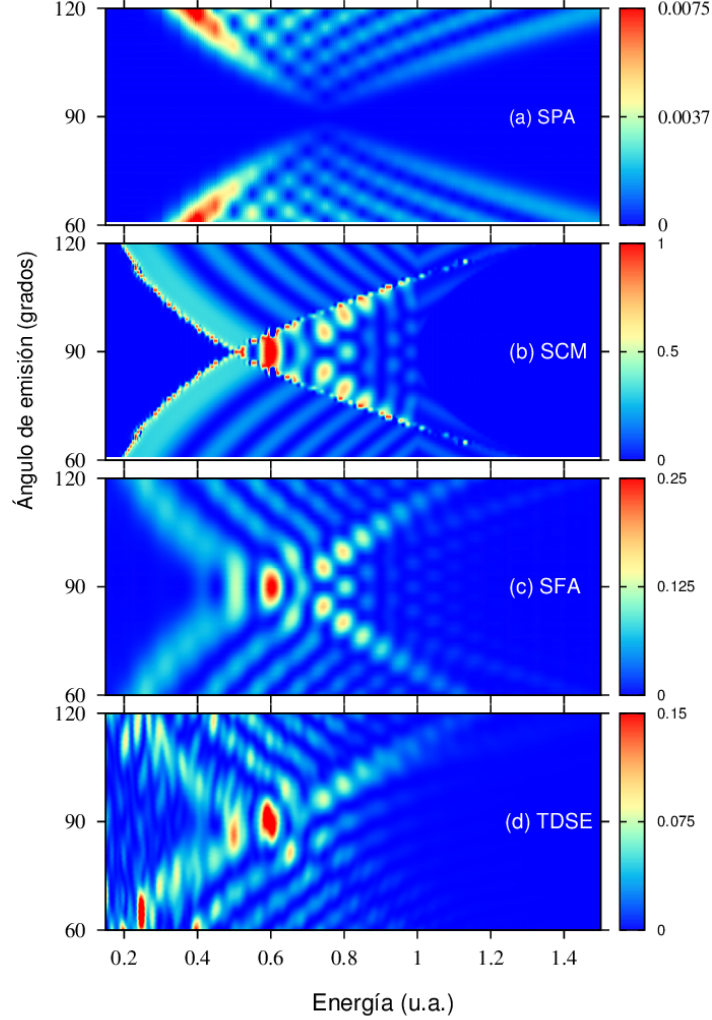
probabilidad de ionización en la dirección perpendicular para diferentes intensidades. A continuación se calcula la probabilidad total de ionización para un ángulo de emisión fijo, integrando en energía la ecuación del espectro del fotoelectrón, ec. (2.89), para parámetros de los pulsos XUV e IR dados por  $F_{X0} = \omega_L = 0,05$  u.a.,  $\omega_X = 1,5$  u.a., y duraciones  $\tau_X = 2T_L$  y  $\tau_L = 5T_L$ , respectivamente.

En la Fig. 5.12 presentamos el cociente entre la emisión electrónica perpendicular y la emisión electrónica hacia adelante, es decir,  $P_{\perp}/P_{\parallel}$ , en función de la amplitud del campo láser  $F_{L0}$ , calculado con el SCM, la SFA y la TDSE. Hemos considerado fija la amplitud del pulso XUV de  $F_{X0} = 0,05$  u.a.. Dado que las probabilidades SFA y SCM son proporcionales a la intensidad del pulso XUV, se espera que los resultados no cambien para valores diferentes de  $F_{X0}$ . Como hemos observado antes en los espectrogramas de la TDSE, tenemos una alta probabilidad de emisión a bajas energías debido a la ionización por el pulso IR solamente. Por lo tanto, para calcular la probabilidad total de ionización en la TDSE a un ángulo de emisión  $\theta = 0^\circ$ , hemos omitido la contribución de la probabilidad por ionización directa del campo IR, es decir,  $P_{\parallel} \simeq P_{\parallel}^{XUV+IR} - P_{\parallel}^{IR}$ . De esta forma, el cociente de la TDSE se vuelve muy sensible al cálculo de  $P_{\parallel}$ , especialmente para  $F_{L0} = 0,04$  u.a., como podemos observar en la figura. Observamos que las tres teorías predicen que el cociente  $P_{\perp}/P_{\parallel}$  incrementa con la amplitud del láser. Esto muestra que para intensidades altas del láser, la emisión electrónica perpendicular se vuelve significativa y no se puede despreciar. El cociente calculado en el SCM muestra oscilaciones alrededor de los cálculos cuánticos (TDSE y SFA) que están relacionadas con el corte abrupto del dominio de energía debido a los límites clásicos que presenta el modelo [ecs. (4.16) y (4.17)].

### 5.2.5. Patrón de interferencia intraciclo en la región tipo perpendicular

Como mencionamos en la sección 5.2, la mayoría de las teorías de los procesos LAPE se basan en la SFA. Un ejemplo de ello es la soft-photon approximation (SPA) [64] que se calcula en el gauge de velocidad, y reproduce satisfactoriamente los resultados obtenidos dentro del SCM y los cuánticos dentro de la SFA y la TDSE para emisión paralela a la dirección de polarización de los campos en la sección 5.2. Sin embargo, esta teoría falla completamente para emisión en dirección perpendicular a la polarización de los campos en procesos LAPE, dado que el elemento dipolar involucrado en el cálculo de la matriz de transición es proporcional a  $\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{k} = k_z$ , que se anula en la dirección perpendicular al eje de polarización del campo láser [ver Apéndice D][64, 71]. Por esta razón, para comparar el espectro del electrón en las diferentes teorías nos vamos a centrar en el patrón de interferencia intraciclo en la región *tipo perpendicular*, en lugar de solamente focalizarnos en la dirección perpendicular cómo veníamos haciendo en

este capítulo.



**Figura 5.13:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo, en unidades atómicas, en la región *tipo perpendicular*, para una duración del pulso XUV de  $\tau_X = T_L$ , calculado dentro de la SPA (a), el SCM (b), la SFA (c), y la TDSE (d). Los parámetros del láser IR son los mismos que en la figura 4.10 y  $F_{L0} = 0,05$  u.a..

Las figuras 5.13(a-d), muestran el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo cerca de la región *tipo perpendicular* para los mismos parámetros del pulso XUV y del láser utilizados en la Fig. 4.10 [ $F_{L0} = 0,05$  u.a. y  $\tau_X = T_L$ ]. Para la SPA extendimos el cálculo a valores continuos de energía para una mejor comparación con las otras teorías e incluimos el corrimiento debido a la energía ponderomotriz en los cálculos, de manera que las posiciones de las bandas laterales estén de acuerdo con la ecuación de la conservación de energía, ec. 4.41, [ver Apéndice D]. De esta manera, la SPA puede interpretarse como un modulador de las bandas laterales, es decir, como una interferencia *intraciclo*. Observamos un acuerdo cualitativo entre las distribuciones de energía-ángulo del SCM (b), la SFA (c), y la TDSE (d). Sin embargo, el modelo de la SPA [Fig. 5.13(a)] se

desplaza hacia valores energía más altos. Más importante aún, la SPA exhibe emisión electrónica perpendicular nula, según Ref. [71]. El espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo de la TDSE muestra cierto grado de asimetría de emisión hacia adelante y hacia atrás, como consecuencia de que no se puede despreciar la fuerza de Coulomb sobre el núcleo restante. Estos resultados refuerzan la validez del SCM para emisión electrónica en dirección perpendicular, ya que predice probabilidad de ionización distinto de cero.

### 5.2.6. Conclusiones

Hemos estudiado la emisión electrónica en la dirección paralela y perpendicular a la polarización de los campos en la ionización de hidrógeno atómico por un pulso XUV asistido por láser. Para ello, utilizamos los resultados obtenidos en el cálculo de la distribución de energía resuelta en ángulo de la sección 4.2, particularizando para el caso de emisión paralela y perpendicular. Obtuvimos una expresión analítica para la probabilidad de ionización en términos de las bien conocidas interferencias (*interciclo*) entre trayectorias del electrón provenientes de diferentes ciclos ópticos del láser IR que da lugar a las bandas laterales, y la interferencia (*intraciclo*) entre trayectorias del electrón que nacen en el mismo ciclo óptico del láser, el cual modula las mismas para cada uno de los casos. Para emisión perpendicular demostramos que además de los factores inter- e intraciclo, el espectro del fotoelectrón puede descomponerse en término de nuevas interferencias, *intra-medio-* e *inter-medio-ciclo*, entre pares de trayectorias dentro de un semiciclo óptico del láser y entre trayectorias de dos semiciclos, respectivamente. Estas trayectorias que nacen en dos semiciclos dentro de un mismo ciclo óptico, interfieren destructivamente para la absorción y/o emisión de un número par de fotones IR, lo que conduce al intercambio de un número impar de fotones del láser para la formación de las bandas laterales. Por lo tanto, la línea de absorción de un solo fotón del XUV (sin intercambio de fotones del láser) está prohibida. Mostramos que el patrón de interferencia *intra-medio-ciclo* modula el patrón intraciclo que se encarga de modular las bandas laterales. Hemos observado un muy buen acuerdo entre el espectro de energía del SCM, tanto para emisión paralela como perpendicular, con los correspondientes a la SFA y a la solución *ab initio* de la TDSE.

Para emisión paralela hemos comparado el espectro del SCM con resultados previos que utilizaron la SFA y la aproximación de punto silla, [61–63], y los resultados cuánticos dentro de la SFA y la solución numérica de la TDSE, encontrando correspondencia cualitativa entre ellos. Mientras que para emisión perpendicular confirmamos la ventaja que presenta el SCM sobre otros, dado que la probabilidad para emisión perpendicular es evidente por encima de otras aproximaciones teóricas como la SPA, la teoría de perturbación dependiente del tiempo a primer orden de Kazansky [61, 63, 72, 73], y la teoría de Bivona [62]. Nuestro estudio no sólo concuerda con el último, sino que

también va más allá, analizando las propiedades de la emisión perpendicular mucho más a fondo.

Por otra parte, hemos estudiado la dependencia de la emisión electrónica en función de la intensidad del láser, observando que a medida que la intensidad del láser IR aumenta, el espectro del fotoelectrón se vuelve más amplio y delimitado, aproximadamente, por los límites clásicos. Encontramos que el límite superior de energía para la emisión perpendicular es independiente de la intensidad del láser, en contraste a lo que sucede en la emisión paralela, el cual aumenta linealmente con la misma [ver Fig. 5.4]. Sin embargo, los límites clásicos inferiores en ambos casos aumentan a medida que lo hace la intensidad del láser, pero a ritmos diferentes [ver ecs. (4.16) y (4.17)]. Además, observamos que para intensidades altas del láser, la emisión electrónica perpendicular se vuelve significativa y no se puede despreciar.

Hemos hecho hincapié en el hecho de que la SFA es precisa para describir el espectro del fotoelectrón cuando la comparamos con la TDSE en un rango amplio de parámetros de los pulsos. Mostramos que el patrón de interferencia intraciclo es independiente de la duración del pulso XUV y de la envolvente, pero exhibe un salto a un determinado valor de energía como función del retardo temporal  $\Delta_X$  entre los dos pulsos, reproduciendo el perfil del potencial vector del láser en el caso de emisión paralela. Para el caso de emisión perpendicular, el patrón de interferencia intra-medio-ciclo tiene periodicidad  $\pi$  en la fase óptica con un salto en la probabilidad que reproduce el perfil del potencial vector del láser al cuadrado a diferencia de la periodicidad  $2\pi$  que presenta el caso de emisión paralela. Demostramos que este salto suave en el espectro del fotoelectrón dentro del SCM se manifiesta como una discontinuidad en modelos que también se basan en la aproximación de punto silla como los de Kazansky *et al* y Bivona *et al* [61–63].

Los resultados que fueron aquí presentados dentro del SCM refuerzan la importancia del modelo sobre otras teorías que surgen de simplificaciones de la SFA. Se vuelve entonces necesario analizar la validez del modelo para otras configuraciones de los campos y otros blancos, ya que esto nos permitirá poder contrastar el SCM con resultados experimentales.

## Capítulo 6

# Emisión electrónica para Argón atómico e ión molecular en LAPE

Hasta ahora, hemos desarrollado el modelo semiclásico para la emisión asistida por láser del  $H(1s)$  cuando ambos campos, XUV e IR, tenían la misma dirección de polarización. Observamos que el espectro de emisión se construye principalmente con información del electrón emitido interactuando con el láser, mientras que la información del blanco sólo se introduce a través del elemento dipolar  $\mathbf{d}$ . Para la región *tipo perpendicular* vimos que resulta relevante conocer si el elemento dipolar evaluado en cada semiciclo consecutivo del láser tiene signo opuesto [ver discusión debajo de las ecs. (4.24) y (5.21)], puesto que esta simetría es la responsable de la interferencia destructiva que anula los órdenes pares de las bandas laterales. En este capítulo nos interesa explorar qué otras simetrías quedan determinadas al variar la configuración de los láseres y considerar otros estados iniciales, y cómo éstas afectan al espectro de emisión. Para ello, vamos a estudiar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo dentro del SCM considerando la ionización del átomo de Argón desde la capa 3 e ión molecular  $H_2^+$  por campos XUV e IR en configuración paralela y ortogonal.

### 6.1. SCM generalizado

Vamos a suponer el campo XUV linealmente polarizado en dirección  $\mathbf{e}_z$  mientras que el campo IR puede estar en la misma dirección de polarización que el pulso XUV (es decir, a lo largo de la dirección  $\mathbf{e}_z$  tal como se describió en el capítulo 4.2) o puede estar orientado perpendicularmente a él (es decir, a lo largo de la dirección  $\mathbf{e}_\perp$ ). Dentro del SCM, la amplitud de transición está dada por la ec. (4.23)

$$T_{if}^- = \sum_{t_s} \frac{-i\sqrt{2\pi}F(t_s)}{|\ddot{S}(t_s)|^{1/2}} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s)) \exp \left\{ iS(t_s) + i\frac{\pi}{4} \text{sgn}[\ddot{S}(t_s)] \right\}, \quad (6.1)$$

y la sumatoria se realiza sobre los tiempos de ionización que satisfacen la ec. (4.10),

$$\frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s)]^2}{2} = \omega_X - I_P. \quad (6.2)$$

En la sección 4.2 obtuvimos el modelo SCM para un potencial vector del láser polarizado en dirección paralela al campo XUV, es decir, con  $\mathbf{A}_L(t) = A_{L0} \sin(\omega_L t) \mathbf{e}_z$ . Todos esos cálculos siguen siendo válidos independientemente del sistema atómico bajo estudio, cuya información está contenida en el elemento dipolar. Esto significa que las ecs. (4.24)-(4.27) siguen siendo válidas. Como consideramos un blanco arbitrario no conocemos a priori la expresión para  $d_z$  en la ec. (4.27), por lo tanto vamos a considerar que si el elemento dipolar evaluado en  $t^{(j,1)}$  tiene la misma magnitud y signo opuesto que  $d_z$  evaluado en  $t^{(j,3)}$ , tomamos  $-1$  delante de la función Heaviside  $\Theta$  en la ec. (4.24) [ídem para los tiempos de emisión  $t^{(j,2)}$  y  $t^{(j,4)}$ ]. Mientras que si tiene la misma magnitud y signo, fijamos el valor  $+1$ . Esto quedará determinado por la constante  $\kappa = \pm 1$  definida como aquella que satisface

$$d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t^{(j,\alpha)})) = \kappa d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t^{(j,\alpha+2)})) \quad \text{con } \alpha = 1, 2. \quad (6.3)$$

Después de un poco de álgebra, la probabilidad de emisión se escribe como

$$|T_{if}^-|^2 = 4\Gamma'(\mathbf{k}) \mathcal{F}_{\parallel}(\mathbf{k}) B(k) \quad (6.4)$$

con  $B(k)$  dado por la ec. (4.37), el factor  $\Gamma'(\mathbf{k})$  dado por

$$\Gamma'(\mathbf{k}) = \frac{2\pi F_{X0}^2 |d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s))|^2}{\sqrt{v_0^2 - k_{\perp}^2} F_{L0}}. \quad (6.5)$$

donde  $\Gamma'(\mathbf{k}) = |h(\mathbf{k})|^2$  con  $h(\mathbf{k})$  dado por la ec. (4.27). Este factor difiere del obtenido en la ec. (4.40) para ionización del átomo de hidrógeno, en que depende del momento del fotoelectrón  $\mathbf{k}$  dado por la ec. (4.11) en lugar de una de sus componentes. El factor intraciclo  $\mathcal{F}(\mathbf{k})$  está definido como

$$\begin{aligned} \mathcal{F}_{\parallel}(\mathbf{k}) = & \left| f_+(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_+}{2} + \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_+(\mathbf{k})]\right) \right. \\ & \left. + \kappa \Theta\left(1 + \frac{\beta_-}{A_{L0}}\right) f_-(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_-}{2} - \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_-(\mathbf{k})]\right) \right|^2, \end{aligned} \quad (6.6)$$

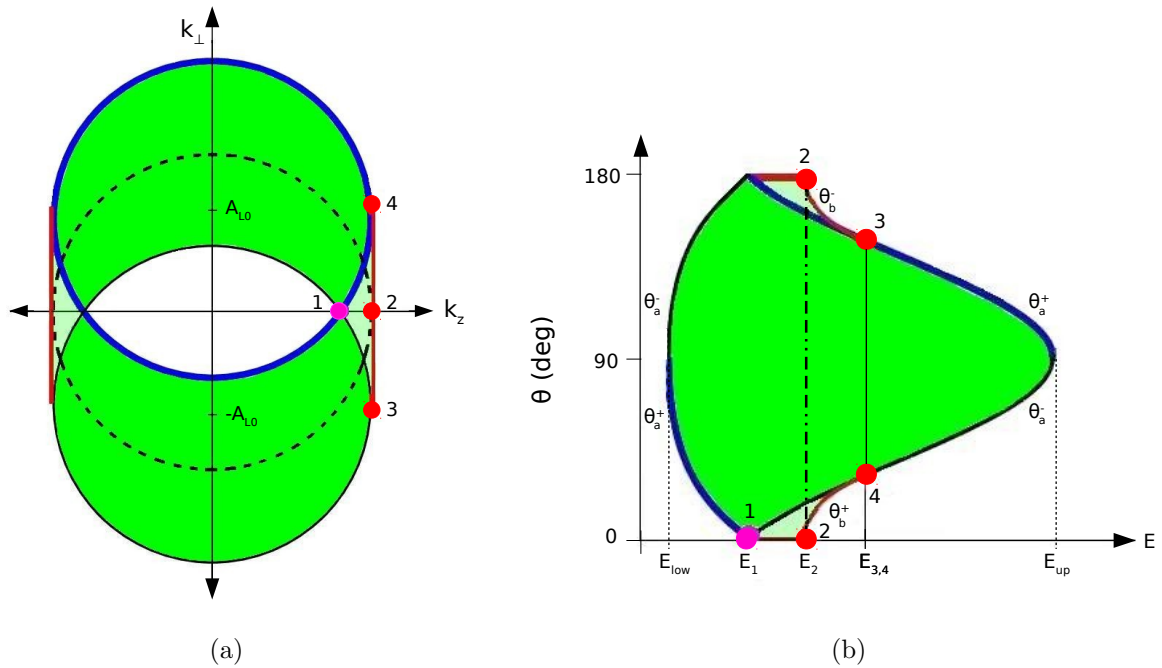
donde  $f_{\pm}(\mathbf{k})$ ,  $\Delta S$  y  $\beta_{\pm}(\mathbf{k})$  vienen dadas por las ecs. (4.35), (4.32) y (4.18), respectivamente. Por lo tanto, sólo difiere del factor interciclo  $F(\mathbf{k})$  de la ec. (4.39) al incluir el parámetro  $\kappa$  para tener en cuenta las propiedades de simetría del elemento dipolar

evaluado durante dos semiciclos consecutivos del potencial vector del láser.

Ahora consideramos el caso que el potencial vector del láser está polarizado en dirección transversal al campo XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) = A_{L0} \sin(\omega_L t) \mathbf{e}_\perp$ , los tiempos de ionización quedan determinados por la ecuación

$$k_z^2 + (k_\perp + A_L(t_s))^2 = v_0^2, \quad (6.7)$$

que a diferencia de la ec. (4.12) tiene intercambiadas las componentes  $k_z$  y  $k_\perp$ . Para determinar la región clásicamente permitida, consideramos la ecuación anterior en un tiempo cualquiera, la cual representa una circunferencia en el espacio de momentos con centro en  $-A_L(t) \mathbf{e}_\perp$  y radio  $v_0$ , cuya posición central oscila a lo largo del eje vertical  $k_\perp$  entre los valores máximo y mínimo del potencial vector del láser. En un ciclo óptico del láser, la circunferencia se mueve a través del área sombreada en la Fig. 6.1 (a).



**Figura 6.1:** (a) Esquema de la región clásicamente permitida en el espacio de momento  $k_z \mathbf{e}_z + k_\perp \mathbf{e}_\perp$ . El círculo en línea de puntos, de radio  $v_0$ , centrado en el origen representa la línea de emisión principal (debido a la ionización del pulso XUV solamente). A medida que el vector vectorial del láser oscila, el círculo se desplaza verticalmente en  $-A_L(t)$  con amplitud  $A_{L0}$ . En la región tipo paralela (en color verde claro) existen dos trayectorias clásicas del electrón que contribuyen a la distribución de probabilidad. En la región tipo perpendicular (en color verde) el número de trayectorias que contribuyen es cuatro. El área blanca representa la región clásicamente prohibida. (b) Lo mismo que en la Fig. (a) pero en el dominio energía-ángulo.

Al igual que en la sección 4.2, en ella se distingue las regiones *tipo paralela* y *tipo perpendicular* en color verde oscuro y verde claro, respectivamente. Para cada valor de momento del electrón ( $k_z, k_\perp$ ), definido como un punto dentro del área sombreada en Fig 6.1 (a), existen 2 ó 4 tiempos de ionización posibles dependiendo de si  $\mathbf{k}$  pertenece a



la región *tipo paralela* o *tipo perpendicular*. En consecuencia, existen 2 ó 4 trayectorias del electrón por ciclo óptico del láser en cada región. Fuera de estas regiones, los tiempos de ionización son complejos, dando lugar a trayectorias que no son clásicas.

Para obtener el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo tenemos que llevar el dominio clásico en el espacio de momentos  $(k_z, k_\perp)$  al plano energía-ángulo  $(E, \theta)$ , a través de  $E = (k_z^2 + k_\perp^2)/2$  y  $\tan \theta = k_z/k_\perp$ . De esta manera, obtenemos las expresiones

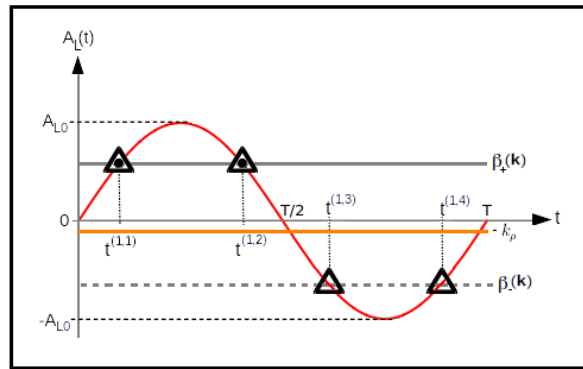
$$\theta_a^\pm(E) = \arcsin \left[ \pm \frac{v_0^2/2 - A_{L0}^2/2 - E}{\sqrt{2E}A_{L0}} \right] + \eta(E) \left( \frac{1 \mp 1}{2} \right) \quad (6.8)$$

$$\theta_b^\pm(E) = \arccos \left[ \pm \frac{v_0}{\sqrt{2E}} \right] \quad (6.9)$$

donde  $\eta(E)$  es

$$\eta(E) = \begin{cases} 1 & \text{si } E < E_1 \\ -1 & \text{si } E > E_1 \end{cases} \quad (6.10)$$

y el valor de energía  $E_1 = (v_0^2 - A_{L0}^2)/2$  corresponde al punto 1 de la Fig. 6.1 (b). De las ecuaciones (6.8) y (6.9), podemos obtener los valores clásicos para la energía del electrón a diferentes ángulos de emisión con respecto al pulso XUV. Los límites clásicos para emisión hacia adelante ( $\theta = 0^\circ$ ) vienen dados por los valores de energía  $E_1$  y  $E_2$  de la ec. (4.17). Mientras que para emisión perpendicular ( $\theta = 90^\circ$ ), los valores de energía están dados por  $E_{low,up}$  de la ec. (4.16). Estos límites clásicos son equivalentes a los obtenidos para ambos campos linealmente polarizados en la misma dirección [sección 4.2], pero intercambiando  $\theta = 0^\circ$  y  $90^\circ$ .



**Figura 6.2:** Tiempos de emisión que son soluciones de la ecuación (6.11) representados como intersección entre las curvas dadas por el potencial vector del láser  $A_L(t) = A_{L0} \sin(\omega_L t)$  en línea roja sólida y las líneas horizontales  $\beta_\pm(k) = -k_\perp \pm \sqrt{v_0^2 - k_z^2}$ , para un momento de electrón fijo con  $k_{z,\perp} > 0$ , en un ciclo óptico del láser. El comienzo del pulso XUV es cero. El caso tipo paralelo se caracteriza por dos tiempos de ionización por ciclo óptico, indicado por círculos. Mientras que el caso tipo perpendicular es caracterizado por cuatro tiempos de ionización por ciclo óptico, indicado por triángulos.

Al igual que antes, los tiempos de ionización que satisfacen la la ec. (6.7) se obtienen



como la intersección entre las líneas horizontales

$$\beta_{\pm}^{\perp}(\mathbf{k}) = -k_{\perp} \pm \sqrt{v_0^2 - k_z^2}. \quad (6.11)$$

y el potencial vector del láser  $A_L(t)$ , como se muestra en la Fig. 6.2. Notamos que la expresión de  $\beta_{\pm}^{\perp}$  coincide con la de  $\beta_{\pm}$  en la ec. (4.18) si se intercambian las componentes  $k_z$  y  $k_{\perp}$ . Los tiempos de ionización correspondientes a diferentes ciclos se relacionan al primero a través de la ec. (4.19), es decir,  $t^{(j,\alpha)} = t^{(1,\alpha)} + (2\pi/\omega_L)(j-1)$  con  $\alpha = 1, 2$  y  $j$  el número de ciclos. Además de la Fig. 6.2, bajo las condición de que  $\beta_{-}^{\perp}(\mathbf{k}) < -A_{L0}$  o  $\beta_{-}^{\perp}(\mathbf{k}) \geq -A_{L0}$ , se obtienen los dos o cuatro tiempos de ionización por ciclo óptico del láser, correspondientes a las situaciones *tipo paralela* y *tipo perpendicular*.

Siguiendo el cálculo para la matriz de transición dentro del SCM de la sección 4.2 y restringiendo el estudio para  $k_{\perp} \geq 0$ , obtenemos que

$$|T_{if}^{-}|^2 = \Gamma''(\mathbf{k}) \mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k}) B(k), \quad (6.12)$$

con el factor  $\Gamma''(\mathbf{k})$  denotando la tasa de ionización que contiene toda la información del blanco, la cual es idéntica para todas las trayectorias de ionización subsiguientes con momento final  $\mathbf{k}$ , es decir,

$$\Gamma''(\mathbf{k}) = \frac{2\pi F_{X0}^2 |d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t_s))|^2}{F_{L0} \sqrt{v_0^2 - k_z^2}}, \quad (6.13)$$

donde  $t_s$  satisface la ec. (6.11). Una vez más los factores  $\Gamma'$  y  $\Gamma''$  de las ecs. (6.5) y (6.13) difieren entre sí sólo por la componente del vector momento que aparece en la raíz del denominador. Nuevamente, la probabilidad de emisión la podemos factorizar en términos de las interferencias *inter-* e *intraciclo* a través de los factores  $B(k)$  y  $\mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k})$ . Como ya se mencionó, el factor  $B(k)$ , que está dado por la ecuación (4.37), da origen a la formación de bandas laterales en el espectro del fotoelectrón situadas en valores de energía dados por la ec. (4.41). El factor  $\mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k})$  modula las bandas laterales provenientes del factor interciclo  $B(k)$  y depende de la energía y del ángulo de emisión del electrón a través de

$$\begin{aligned} \mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k}) = & \left| f_{+}^{\perp}(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_{+}}{2} + \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_{+}^{\perp}(\mathbf{k})]\right) \right. \\ & \left. + \kappa \Theta\left(1 + \frac{\beta_{-}^{\perp}(\mathbf{k})}{A_{L0}}\right) f_{-}^{\perp}(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_{-}}{2} - \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\beta_{-}^{\perp}(\mathbf{k})]\right) \right|^2, \end{aligned} \quad (6.14)$$

donde introducimos el parámetro  $\kappa$  que puede valer  $\pm 1$ , para tener en cuenta las propiedades de simetría del elemento dipolar evaluado durante dos semiciclos consecutivos del potencial vector del láser.

Por otra parte, la acción acumulada tiene la forma

$$\Delta S_{\pm}^{\perp} = \frac{\tilde{S}}{2} \left[ \frac{2}{\pi} \sin^{-1} |\beta_{\pm}^{\perp}(\mathbf{k})/A_{L0}| - 1 \right] - \frac{\text{sgn}[\beta_{\pm}^{\perp}(\mathbf{k})]}{2\omega_L} (4k_{\perp} + \beta_{\pm}^{\perp}(\mathbf{k})) \sqrt{A_{L0}^2 - \beta_{\pm}^2(\mathbf{k})}, \quad (6.15)$$

con  $\tilde{S}$  dada por la ec. (4.38).

A continuación vamos a analizar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo, asumiendo estas dos posibles configuraciones para el campo láser y eligiendo como blanco al átomo de Argón desde la capa  $n = 3$  y el ión molecular  $H_2^+$ .

## 6.2. Argón

Vamos a estudiar las transiciones desde  $\text{Ar}(3s)$  y  $\text{Ar}(3p0)$  al continuo producidas por ionización del XUV asistido por láser. Trabajamos con átomos hidrogenoides que poseen un potencial de ionización dado por  $I_P = -Z_{eff}^2/2n^2$ , donde  $Z_{eff}$  es la carga nuclear efectiva y  $n = 3$  el número cuántico principal de la capa que vamos a considerar. Para diferenciar los estados  $3s$  y  $3p$  utilizamos como carga efectiva los valores  $Z_{eff}^{3s} = 4,37$  u.a. y  $Z_{eff}^{3p} = 3,23$  u.a., respectivamente. Como estado inicial utilizamos una función de onda de la forma  $\varphi_{(n,l,m)}(\mathbf{r}) = R_{n,l}(\mathbf{r})Y_{l,m}(\theta', \phi')$  donde  $n, l, m$  son los números cuánticos principal, angular y magnético.

Para calcular la probabilidad de emisión a distintas configuraciones de los campos, analizamos primero el elemento dipolar asociado a los estados iniciales  $3s$  y  $3p0$  a través de la ec. (2.95),

$$\mathbf{d}_{3s}^{SFA}(\mathbf{v}) = \frac{-i}{\pi} 2^{7/2} \alpha^{5/2} \frac{\mathbf{v}}{(v^2 + \alpha^2)^3} (3v^4 + 11\alpha^4 - 18\alpha^2 v^2), \quad (6.16)$$

$$\mathbf{d}_{3p0}^{SFA}(\mathbf{v}) = \frac{-\sqrt{3}}{\pi} 2^4 \alpha^{7/2} \frac{1}{(v^2 + \alpha^2)^5} [2(3v^2 - 5\alpha^2)(\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_z)\mathbf{v} - (v^4 - \alpha^4)\mathbf{e}_z], \quad (6.17)$$

donde  $\mathbf{v} = \mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t)$  y  $\alpha = \sqrt{2I_P}$ . Por otra parte, tenemos que determinar el valor de  $\kappa$ , es decir, si es igual a  $\pm 1$  en el factor intraciclo de las ecs. (6.6) y (6.14), para las direcciones de polarización de  $\mathbf{A}_L(t)$  paralela y perpendicular con respecto al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$  y  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ , respectivamente. En la tercera columna de la tabla 6.1 se muestra a qué es proporcional el elemento dipolar  $d_z$  para cada uno de los estados iniciales  $3s$  y  $3p0$ , y configuraciones de  $\mathbf{A}_L(t)$ , y en la última columna se muestra el valor de  $\kappa$  respectivo.

En la primera fila de la tabla 6.1 presentamos a qué es proporcional el elemento dipolar para un estado inicial  $3s$  y un potencial vector del láser paralelo al pulso XUV, i.e.,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$ . Se observa que la componente  $z$  del elemento dipolar es proporcional

	$\mathbf{A}_L(t)$	$d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L)$	$\kappa$
3s	$\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$	$\sim (k_z + A_L(t))$	-1
	$\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$	$\sim k_z$	+1
3p0	$\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$	$\sim (k_z + A_L(t))^2 - (v_0^4 - \alpha^4)$	+1
	$\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$	$\sim k_z^2 - (v_0^4 - \alpha^4)$	+1

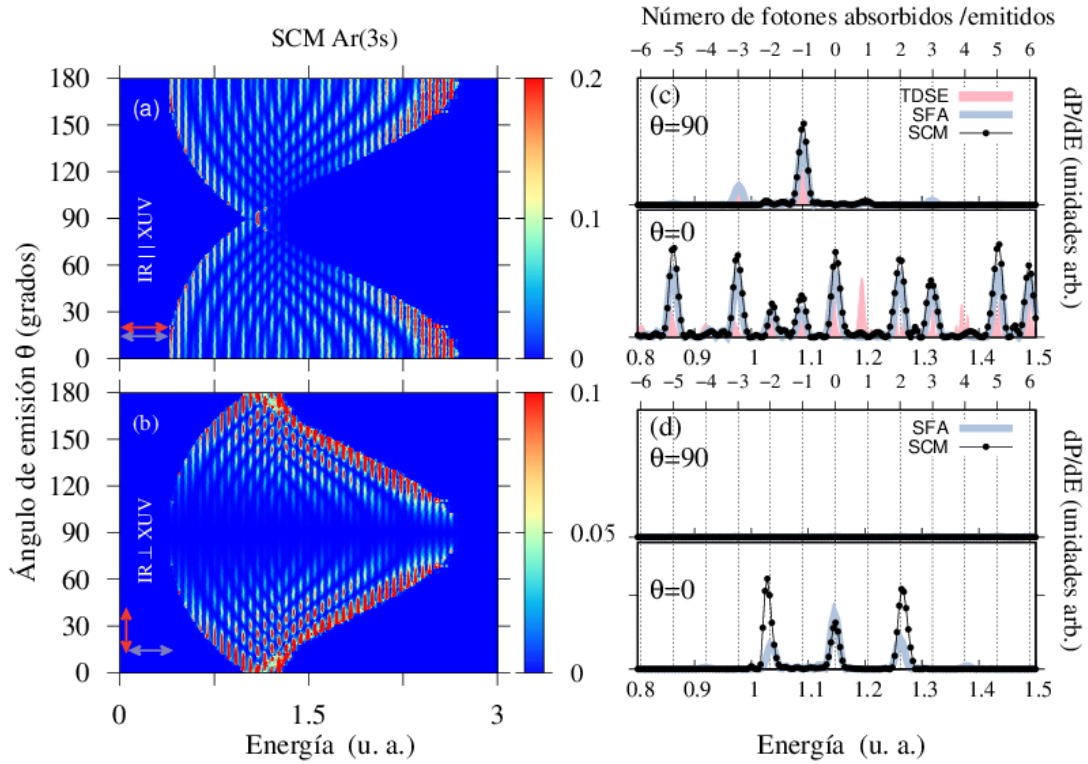
**Tabla 6.1:** Valor de  $\kappa$  para los estados iniciales 3s y 3p0 a diferentes configuraciones del potencial vector del láser con respecto al pulso XUV.

a  $(k_z + A_L(t))$ , por lo tanto, para conocer el valor de  $\kappa$  necesitamos evaluar  $d_z$  en los tiempos de emisión de dos semiciclos consecutivos. De acuerdo a la ec. (4.12) tenemos que  $d_z \sim \pm \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}$ , cuya situación es equivalente a la discutida en la Fig. 4.7, donde la rama positiva de la raíz cuadrada intersecta a  $A_L(t)$  en el primer semiciclo mientras que la rama negativa lo hace en el segundo. Como consecuencia,  $d_z$  tiene la misma magnitud y signo opuesto durante un ciclo óptico y, por lo tanto,  $\kappa = -1$  en el factor de intraciclo  $\mathcal{F}_\parallel(\mathbf{k})$  de la ec. (6.6). Mientras que en la segunda fila de la tabla 6.1 se considera el potencial vector del láser perpendicular al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ . El elemento dipolar es proporcional a  $k_z$ , por lo tanto,  $d_z$  es independiente del semiciclo donde se evalúe, es decir, que su magnitud y signo permanecen sin cambiar durante el intervalo temporal en que el pulso XUV esté activo y, en consecuencia,  $\kappa = +1$  en  $\mathcal{F}_\perp(\mathbf{k})$  de la ec. (6.14).

En la tercera y cuarta fila de la tabla 6.1 mostramos el elemento dipolar para un estado inicial de 3p0 y las configuraciones del potencial vector del láser antes mencionadas, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$  y  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ . La componente  $z$  del elemento dipolar es proporcional a  $(k_z + A_L(t))^2 - (v_0^4 - \alpha^4)$  y  $k_z^2 - (v_0^4 - \alpha^4)$ , respectivamente. De la primera sabemos que  $(k_z + A_L(t))^2 = v_0^2 - k_\perp^2$  de la ec. (4.12). Por lo tanto,  $d_z$  para ambas configuraciones del campo láser es independiente del semiciclo donde se lo evalúe, por lo tanto, conserva su magnitud y signo en toda la duración del pulso XUV. De esta manera,  $\kappa = +1$  en las ecs. (6.14) y (6.6) para ambas configuraciones, es decir,  $\mathcal{F}_\parallel(\mathbf{k})$  y  $\mathcal{F}_\perp(\mathbf{k})$ , respectivamente.

Una vez que hemos identificado el valor  $\kappa$  en el factor intraciclo para las diferentes configuraciones del potencial vector del láser respecto del pulso XUV [ecs. (6.14) y (6.6)] y los estados iniciales 3s y 3p0, vamos a estudiar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para Ar(3s) y Ar(3p0). Para comparar los resultados obtenidos dentro del SCM con los correspondientes dentro de la SFA y la TDSE, vamos a considerar campos XUV e IR modelados por las ecs. (4.42) y (4.43).

En la figura 6.3, se muestran las distribuciones de momento del fotoelectrón para



**Figura 6.3:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para Ar(3s) dentro del SCM, en unidades atómicas, para una duración de un pulso XUV  $\tau_X = 3T_L$  cuando (a) el potencial vector del láser está linealmente polarizado en la misma dirección del pulso XUV,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$  y cuando (b) el potencial vector del láser está linealmente polarizado en dirección perpendicular al pulso XUV,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ . En (c) y (d), se muestra el espectro de energía para las direcciones particulares de emisión hacia adelante y perpendicular al pulso XUV, correspondientes a los casos (a) y (b), respectivamente. Los parámetros XUV e IR están dados por frecuencias  $\omega_X = 2,337$  u.a. y  $\omega_L = 0,057$  u.a., y amplitud  $F_{L0} = 0,041$  u.a.. En línea de puntos se muestra el resultado dentro del SCM, y los correspondientes a la SFA y la TDSE en línea gris y en relleno rosa, respectivamente. Las líneas verticales corresponden a las posiciones de las bandas laterales dadas por la ec. (4.41).

Ar(3s) considerando polarización del campo IR paralela y luego transversal al pulso XUV, Figs. 6.3 (a) y (b), respectivamente. Los parámetros del pulso XUV y láser están dados por las amplitudes  $F_{X0} = 0,01$  u.a.,  $F_{L0} = 0,041$  u.a., las frecuencias  $\omega_X = 2,33$  u.a.,  $\omega_L = 0,057$  u.a., y duraciones  $\tau_X = 3T_L$  y  $\tau_L = 5T_L$ , respectivamente. En la Fig 6.3 (a) se muestra el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para una configuración del láser paralela al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$ , cuyo dominio clásico en energía-ángulo corresponde a la Fig. 4.6 (b). El patrón de interferencia final resulta de las interferencias *inter-* e *intraciclo* que dan lugar a la formación de las bandas laterales y a la modulación de las mismas. Para emisión paralela a la polarización del campo XUV ( $\theta = 0^\circ$ ) tenemos que los límites inferior y superior vienen dados de la ec. (4.16) por  $E_{low} = 0,386$  u.a. y  $E_{up} = 2,685$  u.a., mientras que para emisión perpendicular están dados por  $E_1 = 1,018$  u.a. y  $E_2 = 1,277$  u.a. de la ec. (4.17).

En la Fig. 6.3 (b) se muestra el espectro del fotoelectrón cuando el potencial vector

del láser está polarizado en dirección perpendicular al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ . El dominio clásico en energía-ángulo se describe a través de la Fig. 6.1 (b). Los límites clásicos para la energía del electrón inferior y superior, para emisión hacia delante y perpendicular al pulso XUV, es decir,  $\theta = 0^\circ$  y  $90^\circ$ , están dados por los mismos valores  $E_{1,2}$  y  $E_{low,up}$  mencionados anteriormente. Se observa en la Fig. 6.3 (b), que el espectro del SCM exhibe probabilidad nula para emisión a  $\theta = 90^\circ$ . Esto último se puede explicar a partir de un análisis del factor  $\Gamma''(\mathbf{k})$  en la ec. (6.12), es decir, a través de la componente  $z$  del elemento dipolar [ver ec. (6.13)]. De acuerdo a la segunda fila de la Tabla 6.1, tenemos que  $d_z$  es proporcional a  $k_z$ , el cual se anula para un ángulo de emisión  $\theta = 90^\circ$  y, por lo tanto,  $\Gamma''(\mathbf{k}) = 0$ .

En las Figs. 6.3 (c) y (d), se presenta el espectro de energía del fotoelectrón correspondiente a las Figs. 6.3 (a) y (b) para direcciones de emisión particulares. En la Fig. 6.3 (c) tenemos emisión electrónica a  $\theta = 0^\circ$  con bandas laterales ubicadas en valores de energía dados por la ec. (4.41), separadas entre sí por la energía del fotón IR  $\omega_L$ , mientras que para  $\theta = 90^\circ$  tenemos absorción y/o emisión de un número impar de fotones IR. Esto resulta del valor del parámetro  $\kappa = -1$  en  $\mathcal{F}_{\parallel}(\mathbf{k})$  de la ec. (6.6), que se obtiene en la primera fila de la Tabla 6.1, donde

$$\mathcal{F}_{\parallel}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\sqrt{1 - (\beta(\mathbf{k})/A_{L0})^2}} \cos^2 \left( \frac{\Delta S}{2} + \frac{\pi}{4} \right) \sin^2(\tilde{S}/4), \quad (6.18)$$

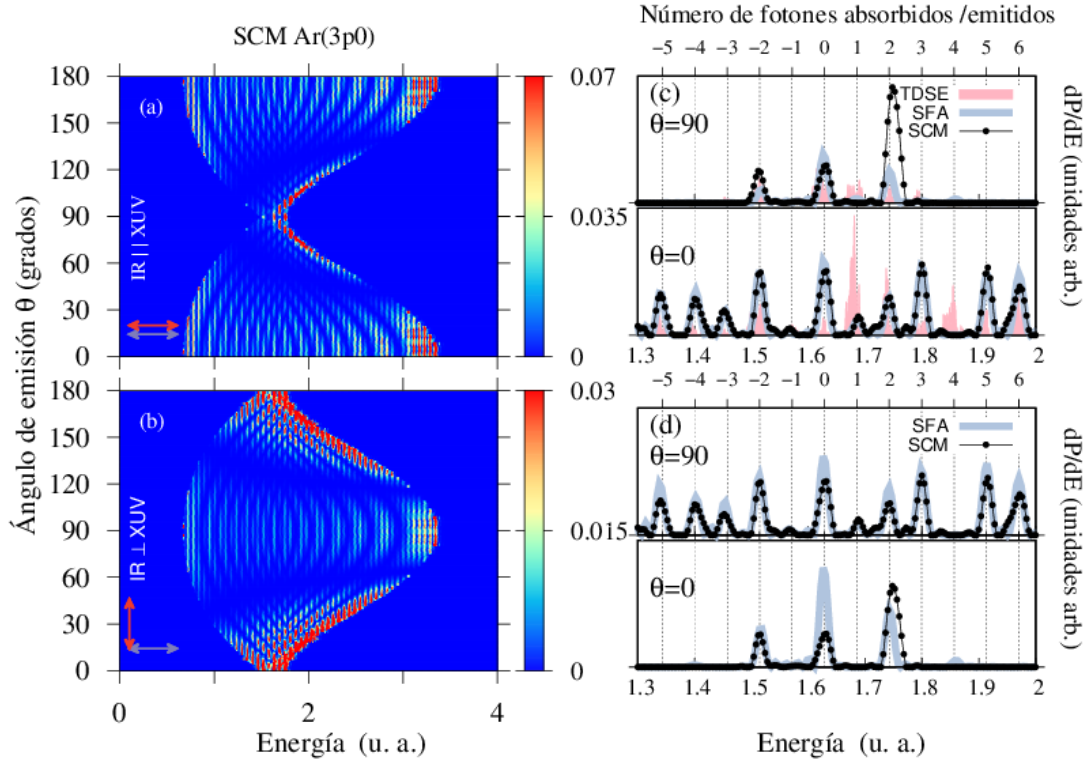
para  $\mathbf{k} = k_{\perp} \mathbf{e}_z$  y  $\beta_+ = \beta_- = \beta$ . El factor  $\sin^2(\tilde{S}/4)$  interfiere destructivamente con la absorción/emisión de un número par de fotones en la formación de las bandas laterales. Los resultados anteriores fueron contrastados con los correspondientes a los cuánticos dentro de la SFA y la TDSE, mostrando un acuerdo cualitativo entre ellos. Reescalamos los espectros fotoelectrónicos en las Figs. 6.3 (c) y (d) para que los resultados dentro de los tres modelos sean comparables. Tanto la SFA como la TDSE predicen en una dirección sólo bandas laterales impares [Fig. 6.3 (c)] o pares [Fig. 6.3 (d)] mientras que en otra dirección están presentes todas las bandas laterales.

En la Fig. 6.3 (d) se muestra el espectro de energía del fotoelectrón correspondiente a la Fig. 6.3 (b). Para emisión a  $\theta = 0^\circ$  sólo están presentes las bandas laterales pares en el espectro de energía. Esto es consecuencia del valor del parámetro  $\kappa = +1$  en el factor intraciclo  $\mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k})$  de la ec. (6.14) [ver segunda fila de la Tabla 6.1], por el cual obtenemos que

$$\mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\sqrt{1 - (\beta^{\perp}(\mathbf{k})/A_{L0})^2}} \cos^2 \left( \frac{\Delta S}{2} + \frac{\pi}{4} \right) \cos^2(\tilde{S}/4), \quad (6.19)$$

cuando  $\mathbf{k} = k_z \mathbf{e}_z$  y para  $\beta_+^{\perp} = \beta_-^{\perp} = \beta^{\perp}$ . El factor  $\cos^2(\tilde{S}/4)$  es el responsable de interferir destructivamente en la absorción/emisión de bandas laterales impares. Por otra

parte, para emisión electrónica a  $\theta = 90^\circ$ , tenemos probabilidad nula como consecuencia de que el elemento dipolar  $d_z$  se anula cuando la componente  $k_z$  para el momento del fotoelectrón es cero. Los resultados dentro del SCM de la Fig. 6.3 (d) coinciden cualitativamente con los cálculos cuánticos dentro de la SFA.



**Figura 6.4:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para Ar(3p0) dentro del SCM, en unidades atómicas, para una duración del pulso XUV  $\tau_X = 3T_L$  cuando (a) el potencial vector del láser está linealmente polarizado en la misma dirección que el pulso XUV,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$  y cuando (b) el potencial vector del láser está linealmente polarizado en dirección perpendicular al pulso XUV,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ . En (c) y (d), se muestra la distribución de energía para las direcciones de emisión hacia adelante y perpendicular al pulso XUV correspondientes a los casos (a) y (b), respectivamente. Los parámetros del pulso XUV e IR utilizados son los mismos que en la Fig. 6.3. En línea de puntos se muestra el resultado dentro del SCM, y los correspondientes a la SFA y la TDSE en línea gris y en relleno rosa, respectivamente. Las líneas verticales corresponden a las posiciones de las bandas laterales dadas por la ec. (4.41).

En la Fig. 6.4 presentamos el espectro del fotoelectrón para Ar(3p0) y las mismas configuraciones del campo láser de la Fig. 6.3 con los mismos parámetros de los pulsos XUV e IR. En la Fig 6.4 (a) presentamos la distribución en energía y ángulo para un potencial vector del láser paralelo al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$ . Los límites clásicos inferior y superior para emisión hacia adelante ( $\theta = 0^\circ$ ) y perpendicular ( $\theta = 90^\circ$ ) al pulso XUV están dados por  $E_{low} = 0,668$  u.a. y  $E_{up} = 3,364$  u.a., y  $E_1 = 1,498$  u.a. y  $E_2 = 1,757$  u.a., de acuerdo a las ecs. (4.16) y (4.17), respectivamente. Se observa además probabilidad de emisión nula para determinados valores  $(E, \theta)$  [o  $(k_z, k_\perp)$ ]. De acuerdo a lo discutido en la Fig. 6.3 (b), esto solamente sucede cuando el elemento dipolar de la ec. (6.5) se anula, es decir cuando  $d_z = 0$ . Para  $d_z$  dado



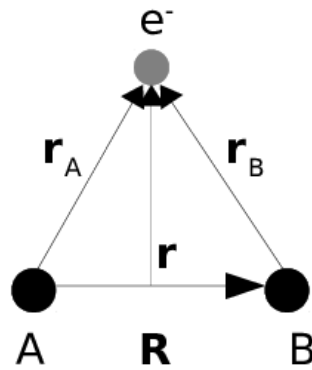
por la tercera fila de la Tabla 6.1 esto sucede cuando  $(k_z + A_L(t))^2 = v_0^4 - \alpha^4$  o cuando la componente transversal del momento del fotoelectrón  $\mathbf{k}$ , dado por la ec. (4.11), satisface que  $k_\perp^2 = v_0^2 - (v_0^4 - \alpha^4)$ . En la Fig. 6.4 (b) mostramos el espectro del fotoelectrón para un potencial vector del láser polarizado en dirección perpendicular al pulso XUV,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ , donde también se observa probabilidad de ionización nula para determinados valores del dominio clásico. Estos valores satisfacen que  $d_z$  de la cuarta fila en la Tabla 6.1 se anule. Esto ocurre valores de la componente longitudinal del momento del fotoelectrón  $\mathbf{k}$  que cumpla que  $k_z^2 = v_0^4 - \alpha^4$ . Los límites clásicos inferior y superior para la energía del electrón a lo largo del eje de polarización del pulso XUV ( $\theta = 0^\circ$ ) y perpendicular a él ( $\theta = 90^\circ$ ) están dados por los valores  $E_1$  y  $E_2$  y  $E_{low,up}$  definidos en la Fig. 6.4 (a).

En las Figs. 6.4 (c) y (d), presentamos las distribuciones de energía correspondientes a las Figs. 6.4 (a) y (b), para direcciones de emisión particulares. En la Fig. 6.4 (c), se muestra el espectro de energía para un ángulo de emisión  $\theta = 0^\circ$ , donde se observan bandas laterales ubicadas en valores de energías dadas por la ec. (4.41). Mientras que para emisión electrónica perpendicular,  $\theta = 90^\circ$ , sólo se observan bandas laterales pares. La carencia de bandas laterales impares en la distribución de energía es una consecuencia de que  $\kappa = +1$  en la ec. (6.6) de acuerdo a la segunda fila en la tabla 6.1. Esto da origen al factor  $\cos^2(\tilde{S}/4)$  en el factor intraciclo que interfiere destructivamente en la formación de bandas laterales impares [ver ec. (6.19)]. En las Figs. 6.4 (c) y (d) reescalamos los espectros fotoelectrónicos para que los resultados dentro de los modelos SCM, SFA y TDSE sean comparables. Cuando contrastamos los resultados obtenidos dentro del SCM con los cuánticos dentro de la SFA y TDSE encontramos que se encuentran en correspondencia cualitativa entre ellos. Sin embargo, extrañamente la TDSE predice probabilidad distinta de cero respecto de los modelos SCM y SFA, para valores de energía del fotoelectrón cercanos a 1,85 u.a. y 1,7 u.a. para  $\theta = 0^\circ$  y  $90^\circ$ , respectivamente.

En la Fig. 6.4 (d) se muestra la distribución de energía correspondiente a la Fig. 6.4 (b), para los casos de emisión particulares antes mencionados. Para  $\theta = 0^\circ$ , tenemos sólo la presencia de bandas laterales pares en el espectro de energía, que deriva de que  $\kappa = +1$  en la ec. (6.14) de acuerdo a la cuarta fila en la Tabla 6.1, lo cual da origen al factor  $\cos^2(\tilde{S}/4)$  [ver ec. (6.19)] que interfiere destructivamente con las bandas laterales impares. Mientras que para un ángulo de emisión  $\theta = 90^\circ$ , están presentes todos los órdenes de bandas laterales ubicadas en valores de energía dados por la ec. (4.41). Por otra parte, se puede ver que las simulaciones obtenidas dentro del SCM en las Figs. 6.4 (c) y 6.4 (d) están cualitativamente de acuerdo con los cálculos cuánticos dentro de la SFA.

### 6.3. Ión molecular $H_2^+$

A continuación vamos a estudiar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para el ion molecular  $H_2^+$ . La figura 6.5 muestra el sistema de coordenadas  $H_2^+$ , donde se identifican la separación internuclear entre los protones A y B dado por  $\mathbf{R}$ , y los vectores posición del electrón con respecto a A y B, y al punto medio de la línea internuclear, dados por  $\mathbf{r}_A$ ,  $\mathbf{r}_B$  y  $\mathbf{r}$ , respectivamente. Los parámetros utilizados para  $H_2^+$  están dados por el potencial de ionización  $I_P = 1,1019$  u.a. y la distancia internuclear en el equilibrio  $R = 2$  u.a..



**Figura 6.5:** Sistema de coordenadas para ión molecular  $H_2^+$ .

Para describir el estado inicial del ión molecular  $H_2^+$  vamos a considerar la función de onda dentro del método de orbitales moleculares como una combinación lineal de orbitales atómicos (LCAO) [74], dada por

$$\varphi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\Psi_{1s}(r_A) + \Psi_{1s}(r_B)], \quad (6.20)$$

donde  $\Psi(r) = 1/\sqrt{\pi}e^{-r}$ . Mientras que para el estado final distorsionado del sistema empleamos la función de onda de Volkov dada por la ec. (2.86).

La probabilidad de ionización para un campo IR polarizado en dirección transversal/paralela al pulso XUV está dada por las ecs (6.4) y (6.12). El elemento dipolar para los factores  $\Gamma'(\mathbf{k})$  y  $\Gamma''(\mathbf{k})$  de las ecs. (6.5) y (6.13), utilizando como estado inicial y final las ecs. (6.20) y (2.86), está dado por

$$\mathbf{d}^{SFA}(\mathbf{v}) = \frac{i}{\pi} 2^{3/2} \alpha^{5/2} \frac{1}{(v^2 + \alpha^2)^2} \left[ \frac{2^3}{v^2 + \alpha^2} \cos\left(\mathbf{v} \cdot \frac{\mathbf{R}}{2}\right) \cdot \mathbf{v} + \sin\left(\mathbf{v} \cdot \frac{\mathbf{R}}{2}\right) \cdot \mathbf{R} \right] \quad (6.21)$$

con  $\mathbf{v} = (\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t))$  y  $\alpha = \sqrt{2I_P}$ .

Para obtener una descripción completa del espectro del fotoelectrón, necesitamos determinar si  $\kappa$  es igual a  $\pm 1$  en las ecs. (6.6) y (6.14) para los factores intraciclo,  $\mathcal{F}_{\parallel}(\mathbf{k})$  y  $\mathcal{F}_{\perp}(\mathbf{k})$ , respectivamente. Para ello vamos a suponer dos posibles direcciones para el



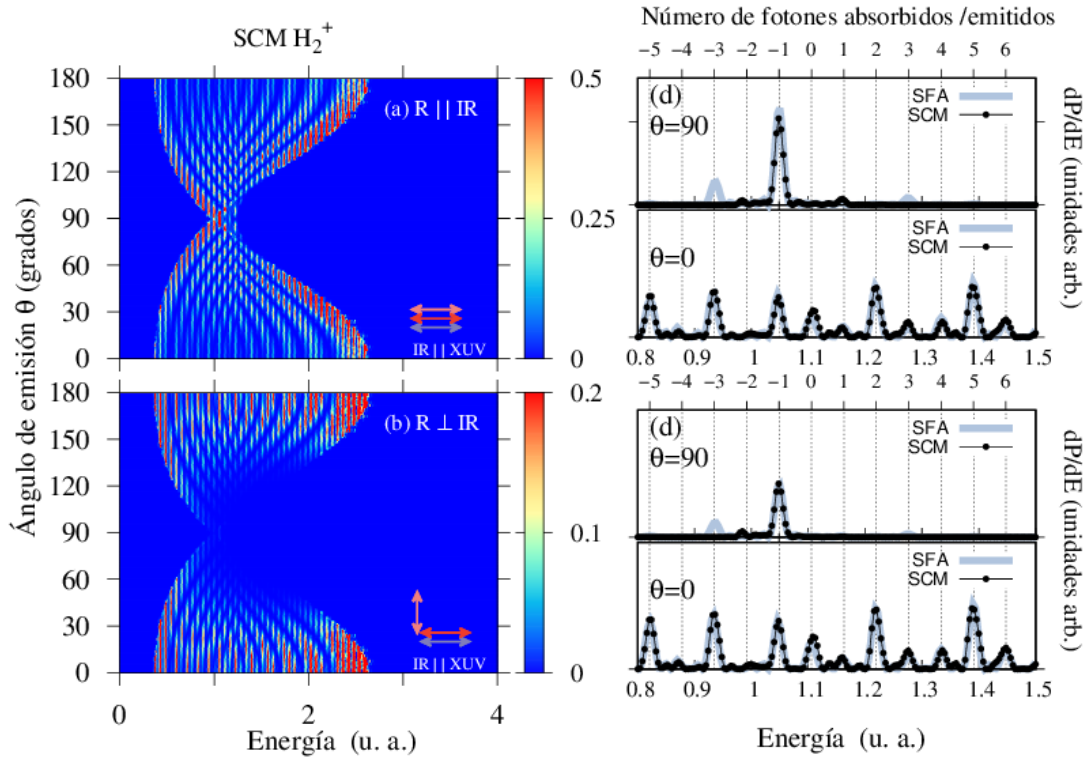
vector internuclear con respecto al potencial vector del láser:  $\mathbf{R} \parallel \mathbf{A}_L(t)$  y  $\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$ . La tabla 6.2 muestra en la tercera columna a qué es proporcional el elemento dipolar para las diferentes configuraciones de  $\mathbf{R}$  y  $\mathbf{A}_L(t)$ , y el valor de  $\kappa$  en la última columna.

	$\mathbf{A}_L(t)$	$d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t))$	$\kappa$
$\mathbf{R} \parallel \mathbf{A}_L(t)$	$\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$	$\sim \left( \frac{2^3}{v_0^2 - \alpha^2} \right) \cos \left[ \frac{R}{2} \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2} \right] (k_z + A_L(t)) + \sin \left[ \pm \frac{R}{2} \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2} \right] R$	—
	$\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$	$\sim \left( \frac{2^3}{v_0^2 - \alpha^2} \right) \cos \left[ \frac{R}{2} \sqrt{v_0^2 - k_z^2} \right] k_z$	+
$\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$	$\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$	$\sim \left( \frac{2^3}{v_0^2 - \alpha^2} \right) \cos \left[ \frac{R}{2} k_\perp \right] (k_z + A_L(t))$	—
	$\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$	$\sim \left( \frac{2^3}{v_0^2 - \alpha^2} \right) \cos \left[ \frac{R}{2} k_z \right] k_z + \sin \left[ \frac{R}{2} k_z \right] R$	+

**Tabla 6.2:** Valor de  $\kappa$  para el estado fundamental a diferentes configuraciones del vector internuclear  $\mathbf{R}$  y del potencial vector del láser con respecto al pulso XUV.

En la primera fila de la Tabla 6.2, consideramos el vector internuclear  $\mathbf{R}$  paralelo al potencial vector del láser, es decir,  $\mathbf{R} \parallel \mathbf{A}_L(t)$  y  $\mathbf{A}_L(t)$  paralelo al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$ . Para esta configuración la componente  $z$  del elemento dipolar puede expresarse como la suma de dos términos,  $d_z \sim d_{z,1} + d_{z,2}$ , respectivamente, donde cada uno de ellos debe ser evaluado en dos semiciclos consecutivos del láser. De esta manera, cada término es proporcional  $k_z + A_L(t^{(j,\alpha)}) = \pm \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}$  de acuerdo a la ec. (4.12) y  $\sin \left[ \pm \frac{R}{2} \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2} \right] R$ , respectivamente, donde la rama positiva de la raíz cuadrada pertenece a la primera mitad del ciclo IR y negativa a la segunda. Por lo tanto,  $d_z$  tiene la misma magnitud y signo opuesto en cada semiciclo del láser y entonces  $\kappa = -1$  en el factor de intraciclo  $\mathcal{F}_\parallel(\mathbf{k})$  de la ec. (6.6). En la segunda fila de la Tabla 6.2 se muestra el elemento dipolar cuando el potencial vector del láser está polarizado en dirección perpendicular al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ . El elemento dipolar  $d_z$  es proporcional a  $k_z$ , el cual es independiente del semiciclo donde se lo evalúe y permanece con la misma magnitud y signo en el intervalo temporal que dure el pulso XUV. Por lo tanto,  $\kappa = +1$  en el factor intraciclo  $\mathcal{F}_\perp(\mathbf{k})$  de la ec. (6.14). Para  $\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$  y las mismas configuraciones de  $\mathbf{A}_L(t)$  antes utilizadas, tenemos que el elemento dipolar para cada una de ellas están dados por  $d_z \sim (k_z + A_L(t)) = \pm \sqrt{v_0^2 - k_\perp^2}$  y  $d_z \sim \left( \frac{2^3}{v_0^2 - \alpha^2} \right) \cos \left[ k_\perp \frac{R}{2} \right] k_z + \sin \left[ k_\perp \frac{R}{2} \right] R$  donde  $k_{z,\perp}, R > 0$ , respectivamente. Realizando un análisis similar al anterior, es posible deducir que los valores de  $\kappa$  en el factor intraciclo dado por las ecs. (6.6) y (6.14), es decir,  $\mathcal{F}_\parallel(\mathbf{k})$  y  $\mathcal{F}_\perp(\mathbf{k})$ , es  $\mp 1$ , respectivamente.

A continuación vamos a estudiar el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para el ion molecular  $H_2^+$  y comparamos el resultado dentro del SCM con los cálculos cuánticos dentro de la SFA. En la Fig. 6.6, presentamos el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para  $H_2^+$ , considerando el potencial vector del láser paralelo al campo



**Figura 6.6:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para  $H_2^+$  dentro del SCM, en unidades atómicas, para un potencial vector del láser linealmente polarizado paralelo al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$  y una duración del pulso XUV  $\tau_X = 3T_L$  cuando (a) el vector internuclear es paralelo al potencial vector del láser,  $\mathbf{R} \parallel \mathbf{A}_L(t)$  y cuando (b) el vector internuclear es perpendicular al potencial vector del láser,  $\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$ . Las dos configuraciones se indican mediante flechas en la parte inferior de las figuras. En (c) and (d) la distribución de energía del fotoelectrón, en unidades arbitrarias, para las direcciones de emisión hacia adelante y perpendicular al pulso XUV,  $\theta = 0^\circ$  y  $\theta = 90^\circ$ , respectivamente. Los parámetros del pulso XUV e IR son los mismos que los utilizados en la Fig. 6.3. Los parámetros utilizados para ión molecular  $H_2^+$  son el potencial de ionización  $I_P = 1,1019$  u.a. y la distancia internuclear  $R = 2$  u.a.. Los resultados dentro del SCM y la SFA se muestran en línea de puntos y gris, respectivamente. Las líneas verticales corresponden a las posiciones de las bandas laterales dadas por la ec. (4.41).

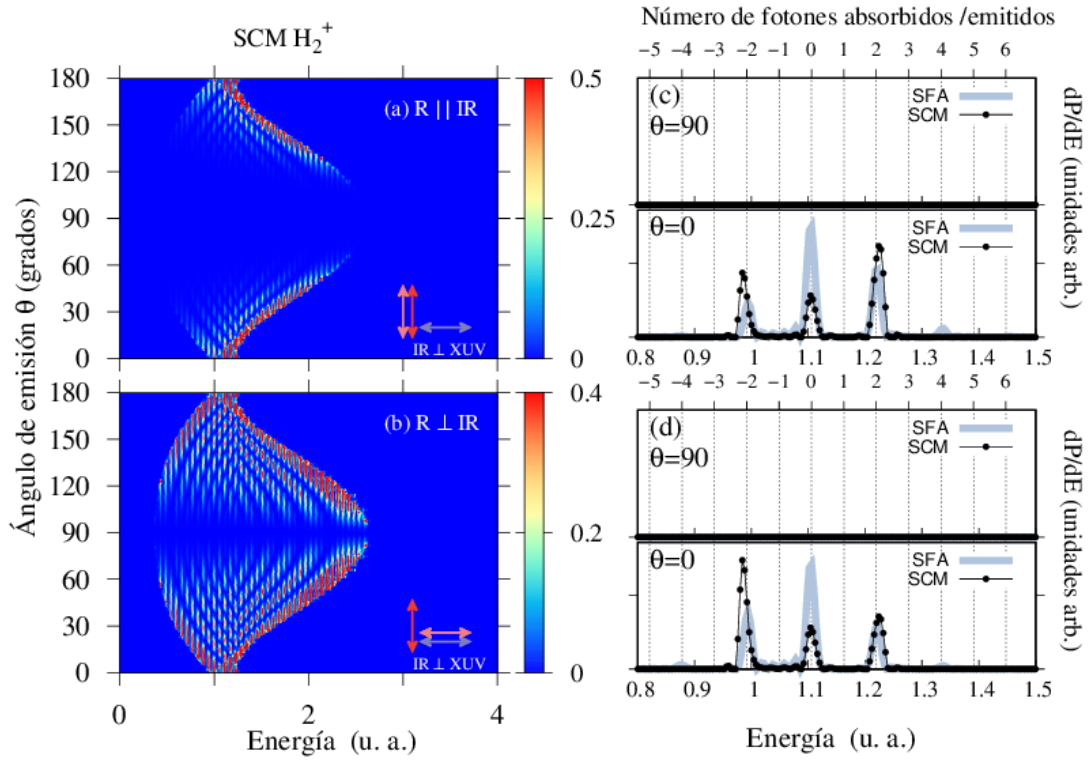
XUV,  $\mathbf{A}_L(t) \parallel \mathbf{e}_z$ . Además consideramos las diferentes orientaciones para el vector internuclear  $\mathbf{R}$  con respecto a  $\mathbf{A}_L(t)$ , indicadas por flechas en la parte inferior de la figura. Los parámetros XUV e IR son los mismos que los utilizados en las Figs. 6.3 y 6.4. En las Figs. 6.6 (a) y (b), se muestra la distribución en energía y ángulo, cuyo dominio clásico corresponde a la Fig. 4.6 (b). Los límites clásicos para la emisión paralela al eje de polarización del pulso XUV ( $\theta = 0^\circ$ ) están dados por la ec. (4.16) con  $E_{low} = 0,3634$  u.a. y  $E_{up} = 2,6243$  u.a., mientras que para la emisión perpendicular ( $\theta = 90^\circ$ ) estos valores son  $E_1 = 0,9765$  u.a. y  $E_2 = 1,2351$  u.a. de acuerdo a la ec. (4.17). En la Fig. 6.6 (a) se muestra el espectro del fotoelectrón cuando el vector internuclear  $\mathbf{R}$  está orientado en la misma dirección de los campos XUV e IR, mientras que en la Fig. 6.6 (b) se muestra el espectro del fotoelectrón cuando el vector internuclear  $\mathbf{R}$  está orientado perpendicular a los campos. La diferencia entre ambos espectrogramas es que para este último la distribución en energía y ángulo se ve afectado para direcciones de

emisión cercanas a  $\theta = 90^\circ$ . Esto se debe a que el electrón tiene probabilidad nula de ser emitido en la dirección donde están ubicados los protones [ver Fig. 6.5]. Analíticamente, es posible determinar estos valores para los cuales la probabilidad de emisión dada por la ec. (6.4) es cero, anulando el elemento dipolar en la ec. (6.5), el cual contiene toda la información espacial del sistema atómico. En la Fig. 6.6 (b), para  $\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$ , el elemento dipolar  $d_z$  obtenido en la 3<sup>ra</sup> fila en la Tabla 6.2 es cero cuando  $\cos \left[ \frac{R}{2} k_\perp \right] = 0$  para valores de  $k_\perp = (2n + 1)\pi/2$  o cuando  $(k_z + A_L(t)) = 0$ , es decir,  $k_\perp = v_0$  de acuerdo a la ec. (4.12).

En las Figs. 6.6 (c) y (d), se muestra el espectro de energía del fotoelectrón correspondiente a las Figs. 6.6(a) y (b), para direcciones de emisión particulares con respecto al pulso XUV, dentro de los cálculos del SCM y la SFA. Para los ángulos de emisión  $\theta = 0^\circ$  y  $\theta = 90^\circ$ , las distribuciones de energía en las Fig. 6.6 (c) y (d) son similares, independientemente de la orientación del vector internuclear  $\mathbf{R}$  con respecto al potencial vector del láser  $\mathbf{A}_L(t)$ . Esto se debe a que el factor intraciclo  $\mathcal{F}_\parallel(\mathbf{k})$  es el mismo para ambas configuraciones de  $\mathbf{R}$ , puesto que el elemento dipolar  $d_z$  para cada una introduce el valor  $\kappa = -1$  en la ec. (6.6). Por último, cuando se compara los resultados dentro del SCM con los cuánticos dentro de la SFA, observamos que están en correspondencia cualitativa entre ellos.

Vamos a considerar ahora que el potencial vector del láser está polarizado en dirección perpendicular al campo XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$ , y las configuraciones del vector internuclear  $\mathbf{R}$  mencionadas en la Fig. 6.6. Esto se muestra en la Fig. 6.7 donde los parámetros del pulso XUV e IR son los mismos que los utilizados en la Fig. 6.6. La distribución en energía y ángulo de las Figs. 6.7 (a) y 6.7 (b) está descrito por el dominio clásico de la Fig. 6.1 (a). Los límites clásicos para la energía del electrón en emisión hacia adelante ( $\theta = 0^\circ$ ) y perpendicular ( $\theta = 90^\circ$ ) están dados por los valores  $E_{1,2}$  y  $E_{low,up}$  de la Fig. 6.6. En la Fig. 6.7 (a), presentamos el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo cuando el vector internuclear es paralelo al potencial vector del láser,  $\mathbf{R} \parallel \mathbf{A}_L(t)$ . Para direcciones de emisión que tienden a ser paralela a la dirección  $\mathbf{R}$  donde están ubicados los protones (es decir, cercanas a  $90^\circ$ ), el electrón tiene probabilidad de emisión nula. Como se mencionó anteriormente, esto significa que  $d_z = 0$  en la ec. (6.13). Por lo tanto, de la segunda fila de la Tabla 6.2 tenemos que  $d_z$  es proporcional a  $\cos \left[ (R/2) \sqrt{v_0^2 - k_z^2} \right] k_z$ , el cual se anula para  $k_z = 0$  o cuando  $\cos \left[ (R/2) \sqrt{v_0^2 - k_z^2} \right] = 0$ .

En la Fig. 6.7 (b) se presenta el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo cuando el vector internuclear es perpendicular al potencial vector del láser,  $\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$ . Para un ángulos de emisión  $\theta = 90^\circ$ , se observa que la probabilidad de ionización es nula. Por lo tanto, que la ec. (6.12) dentro del SCM se anule se debe a que el elemento dipolar de la ec. (6.13) es cero. De acuerdo a la cuarta fila de la tabla 6.2, el  $d_z$  correspondiente



**Figura 6.7:** Espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para  $H_2^+$  dentro del SCM, en unidades atómicas, para un potencial vector del láser linealmente polarizado perpendicular al pulso XUV, es decir,  $\mathbf{A}_L(t) \perp \mathbf{e}_z$  y duración del pulso XUV  $\tau_X = 3T_L$  cuando (a) el vector internuclear es paralelo al potencial vector del láser,  $\mathbf{R} \parallel \mathbf{A}_L(t)$  y cuando (b) el vector internuclear es perpendicular al potencial vector del láser,  $\mathbf{R} \perp \mathbf{A}_L(t)$ . Las distintas configuraciones se indican mediante flechas en la parte inferior de la figuras. En (c) y (d) la distribución de energía del electrón, en unidades arbitrarias, para las direcciones de emisión hacia adelante y perpendicular al pulso XUV,  $\theta = 0^\circ$  y  $\theta = 90^\circ$ , respectivamente. Los parámetros para los pulsos XUV e IR con los mismos que los utilizados en la Fig. 6.6. Los resultados dentro del SCM y la SFA se muestran en línea de puntos y gris, respectivamente. Las líneas verticales corresponden a las posiciones de las bandas laterales dadas por la ec. (4.41).

a esta configuración está dado por  $d_z \sim \left( \frac{2^3}{v_0^2 - \alpha^2} \right) \cos(k_z \frac{R}{2})k_z + \sin(k_z \frac{R}{2})R$ , el cual se anula solamente cuando la componente longitudinal del momento del fotoelectrón  $k_z$  es igual a cero, es decir, para  $\theta = 90^\circ$ .

En las figuras 6.7 (c) y 6.7 (d), presentamos el espectro de energía del electrón correspondiente a las Figs. 6.7 (a) y 6.7 (b). Para las direcciones de emisión  $\theta = 0^\circ$  y  $\theta = 90^\circ$  con respecto al pulso XUV, tenemos que las distribuciones de energía en las Fig. 6.7 (c) y (d) son equivalentes independientemente de la orientación del vector internuclear  $\mathbf{R}$  respecto de  $\mathbf{A}_L(t)$ . Esto se debe a que para ambas configuraciones de  $\mathbf{R}$  el factor intraciclo  $\mathcal{F}_\perp(\mathbf{k})$  es el mismo, dado que el elemento dipolar  $d_z$  permanece sin cambiar en magnitud y signo en dos semiciclos consecutivos para ambos casos e introduce el valor de  $\kappa = +1$  en la ec. (6.14). Los resultados dentro del SCM coinciden cualitativamente con los obtenidos dentro de la SFA.

## 6.4. Conclusiones

Hemos aplicado el SCM para distintas configuraciones de los campos XUV e IR y otros blancos como argón atómico e ión molecular  $H_2^+$ , aparte del hidrógeno  $1s$  que consideramos en los capítulos anteriores. Para la configuración ortogonal de los campos reconocimos en el dominio de energía-ángulo las regiones *tipo paralela* y *tipo perpendicular* al igual que las caracterizadas en la sección 4.2 [75], en las cuales dos o cuatro trayectorias clásicas del electrón por ciclo óptico del láser contribuyen al patrón de interferencia intraciclo, que actúa como modulador de las bandas laterales. Mostramos que la probabilidad de emisión dentro del SCM sigue factorizándose en términos de las interferencias temporales *inter* e *intraciclo*. La información del blanco está contenida principalmente en el factor  $\Gamma$  a través del elemento dipolar. Sin embargo, notamos que como el elemento dipolar está evaluado en  $\mathbf{k} + \mathbf{A}_L(t)$  se acoplan algunas propiedades espaciales con temporales. Esto se ve reflejado en el factor *intraciclo* a través del parámetro  $\kappa$  que pone de manifiesto estas simetrías. De esta manera, para ciertas direcciones de emisión, sólo sobreviven ciertos órdenes de bandas laterales, típicamente pares o impares (ver ecs. (6.18) y (6.19) por ejemplo).

Para ejemplificar estas conclusiones, analizamos el caso del argón atómico estudiando las propiedades de simetría del elemento de matriz dipolar para los estados iniciales,  $3s$  y  $3p0$ , considerando las diferentes configuraciones de los campos: paralelos y ortogonales. Para cada uno de estos estados iniciales comparamos los espectros de emisión en función de energía y ángulo del electrón dentro del SCM con los correspondientes dentro de la SFA y la *ab initio* TDSE, encontrando un acuerdo cualitativo entre ellos. En particular, encontramos un buen acuerdo en la predicción de supresión de algunos órdenes de bandas laterales en determinadas direcciones de emisión [ver Figs. (6.3)(c-d) y 6.4 (c-d) para  $\theta = 90^\circ$  y  $\theta = 0^\circ$ ]. Sin embargo, para la ionización de  $\text{Ar}(3p0)$ , observamos que la probabilidad de ionización TDSE predice emisión no nula para un el SB de orden 1 que dentro del SCM y SFA esta prohibido [ver Fig. 6.4 (c)]. Aún queda pendiente comprender el origen de esta estructura.

Por otra parte analizamos el espectro del fotoelectrón resuelto en ángulo para el ión molecular  $H_2^+$  desde el estado fundamental y las dos configuraciones del campo láser anteriormente mencionadas. El vector internuclear  $\mathbf{R}$  introduce una nueva variable a la hora de analizar las configuraciones posibles de ionización y las simetrías del sistema. Para cada una de las configuraciones del campo láser respecto del pulso XUV, encontramos que para emisión paralela y perpendicular al eje de polarización del pulso XUV, las distribuciones de energía son equivalentes entre sí<sup>1</sup> independientemente de la orientación del vector internuclear  $\mathbf{R}$  respecto del campo láser.

<sup>1</sup>En el sentido de que en ambos casos se predicen mismas reglas de selección en las direcciones de emisión con  $\theta = 0^\circ$  y  $90^\circ$ , aunque las distribuciones angulares sean distintas.

Finalmente, a través del SCM podemos reconocer en líneas generales las estructuras del espectro de emisión que provienen de las características temporales de los campos (a través de factores inter- e intraciclo) de aquellas que provienen de la información del blanco a través del elemento dipolar en  $\Gamma$ . Esto último permite que el modelo semiclásico sea fácil de extender hacia átomos multielectrónicos y moléculas, dado que las partes temporal y espacial están desacopladas. Sin embargo, en situaciones especiales, el acople entre las propiedades espaciales de la distribución electrónica inicial y temporal de pulso IR dan lugar a interferencias destructivas que anulan la emisión para determinados valores de energía. Es en estas situaciones donde sería interesante corroborar con mediciones experimentales resueltas en ángulo para valores de intensidad del láser altos tales como las que se producen actualmente [69, 76, 77].

# Capítulo 7

## Conclusiones generales

*“It is understandable that people want to know how it affects them. But as a scientist, I would hope society would be equally interested in fundamental science. After all, you can’t have the applications without the curiosity-driven research behind it.”*

— Donna Strickland-Premio Nobel 2018.

Esta tesis se refiere a procesos atómicos (y moleculares) producidos por láseres cuasi-monocromáticos, como se muestra en el capítulo 3, como por láseres bicromáticos (XUV + IR) presentados en los capítulos 4 al 6. Este último caso se conoce como LAPE por fotoemisión asistida por láser ya que el pulso láser XUV es el encargado de la fotoionización mientras que el láser IR (o NIR) se encarga de la formación de las bandas laterales.

En la primera parte de la tesis estudiamos la ionización por encima del umbral (ATI) producida por un pulso IR para el átomo de hidrógeno. Redefinimos el concepto de la energía ponderomotriz  $U_P$  como el promedio temporal de la energía de oscilación del electrón, la cual cambia en cada ciclo óptico. Para ello, consideramos pulsos cortos con envolventes que varían en el tiempo y, por lo tanto, cuya intensidad vara dentro del pulso. A través del modelo semiclásico (SCM) que asocia tiempos de ionización con trayectorias del electrón, encontramos que para un determinado valor de intensidad (o  $U_P$ ) que depende del tiempo en el cual se produce la ionización, le corresponde un pico ATI con una posición determinada en el espectro de energía del fotoelectrón. Para pulsos con envolventes que involucran múltiples escalones, con distintos valores de  $U_P$  para cada escalón y retardo temporal, se pudo identificar subestructuras asociadas a tales picos como consecuencia de la interferencia *interpulso* entre los escalones. Para pulsos con una envolvente continua más realista encontramos que la intensidad del campo eléctrico y la energía ponderomotriz cambian continuamente. No obstante, se pudo caracterizar de forma cualitativa el espectro de energía del fotoelectrón a partir de



los resultados obtenidos para pulsos con múltiples escalones. Todo esto fue contrastado con los resultados cuánticos obtenidos dentro de la SFA, la CVA y la TDSE.

Como conclusión para esta primera parte, queremos remarcar dos puntos importantes: (i) En la literatura el concepto de energía ponderomotriz está definido como un único valor  $U_P^0$  que tiene en cuenta la amplitud máxima alcanzada por el campo eléctrico solo considerando su variación espacial por efectos de focalización del haz del láser. En vista del análisis realizado en esta tesis, concluimos que no sólo se debe tener en cuenta la variación espacial, sino también la variación temporal de la energía ponderomotriz  $U_P$  lo cual lleva a algunas características particulares del espectro de emisión. En esta tesis hemos estudiado algunas de estas estructuras. (ii) A través del modelo SMM que relaciona tiempos de ionización con trayectorias clásicas, logramos mapear el espectro de energía del electrón con los tiempos de ionización, es decir que, a cada instante del pulso le corresponde un valor de  $U_P$  determinado, que luego, por la regla de conservación de energía dada por la ec. (1.3), le corresponde una determinada posición en el espectro de emisión.

En la segunda parte de la tesis nos centramos en la fotoionización asistida por láser (LAPE) en el régimen intermedio entre *streaking* y *sideband*. Desarrollamos un modelo semiclásico (SCM) semejante al conocido en la literatura para procesos ATI con sólo un pulso IR. Logramos comprender el espectro de emisión en términos de interferencias entre trayectorias electrónicas clásicas originadas en distintos tiempos de ionización. En particular, la formación de las bandas laterales se puede explicar como un fenómeno de interferencia entre distintas trayectorias que comienzan en distintos ciclos ópticos (interferencia *interciclo*). Dentro del SCM, se obtuvo un dominio clásico para el fotoelectrón en el espacio de momentos, o bien en el espacio de energía-ángulo. En ella, logramos distinguir dos regiones: *tipo paralela* y *tipo perpendicular*, de acuerdo al número de trayectorias que interfieren dentro de cada ciclo óptico del láser, 2 y 4 trayectorias por ciclo, respectivamente. Luego, la probabilidad de emisión dentro del SCM se escribe como un producto de tres factores que dan cuenta de las interferencias *intraciclo* (con la suma de trayectorias emitidos en un mismo ciclo), *interciclo* (con la suma de trayectorias emitidas en distintos ciclos) y un factor  $\Gamma$  que toma en cuenta la información del blanco a través del elemento dipolar. En el espectro del fotoelectrón, el factor *intraciclo* es quien se encarga de modular las bandas laterales equiespaciadas en la energía del fotón del láser.

A lo largo de la tesis analizamos la dependencia del espectro electrónico con la intensidad del láser, el retardo temporal entre ambos campos (XUV e IR), sus envolventes y también se lo ha comparado con otros modelos. Se pudo observar que cuando la intensidad del láser aumenta, la región *tipo perpendicular* en el espectrograma dentro del SCM se vuelve considerable, confirmando el hecho de que el SCM predice emisión distinta de cero en contraste con otros modelos teóricos como la SPA [64, 71] y la teoría



de perturbaciones dependiente del tiempo a primer orden de Kazanksy [61, 63, 72, 73]. Asimismo, para una duración del pulso XUV que involucra un período del campo láser, se analizó el espectro del fotoelectrón en función del retardo temporal entre los pulsos XUV e IR. Se observó que, para valores de la fase de retardo 0 y  $\pi$ , los espectrogramas dentro del SCM presentan simetría de emisión hacia atrás y hacia adelante en la dirección de polarización de los campos. Esta simetría se pierde para otros valores de la fase, y finalmente es menos evidente cuando la duración del pulso XUV involucra más períodos del láser. Es necesario remarcar que, independientemente de la envolvente de los pulsos, la probabilidad de emisión para una duración del pulso XUV igual a un ciclo IR, cumple el rol del factor intraciclo. Por lo tanto, en este sentido es posible construir un espectro de emisión para pulsos más largos, multiplicando el primero por el factor interciclo directamente.

Para el caso particular de emisión perpendicular a la dirección de polarización de los campos, se demostró que la interferencia *intraciclo* proviene de 4 trayectorias del electrón que nacen en un mismo ciclo óptico del láser pudiéndose descomponer en dos tipos de interferencia que involucran pares de trayectorias. La primera hace referencia a la interferencia (*intra-medio-ciclo*) de pares trayectorias que nacen dentro de un semiciclo óptico del láser, mientras que la segunda involucra la interferencia (*inter-medio-ciclo*) entre pares de trayectorias que nacen en distintos semiciclos dentro de un mismo ciclo óptico. Como consecuencia, en un ciclo óptico del láser, estas trayectorias interfieren destructivamente en la absorción y/o emisión de fotones, permitiendo solo el intercambio de un número impar de fotones del láser IR en la formación de las bandas laterales y prohibiendo el intercambio de un número par. Otro punto importante a notar es que, no sólo la emisión a  $90^\circ$  es distinta de cero como predicen otros modelos teóricos, sino que presenta selectividad en los órdenes de bandas laterales permitidas que da cuenta de simetrías particulares del sistema. Para ambos casos de emisión paralela y perpendicular a la polarización de los campos, hallamos que el espectro en función del retardo temporal entre los pulsos presenta una discontinuidad en la energía del fotoelectrón que reproduce el perfil del potencial vector del láser IR y que el espectrograma aumenta en su dominio de energía a medida que lo hace la intensidad del láser IR dentro de los límites clásicos del SCM. Todos los resultados dentro del SCM fueron corroborados con los resultados cuánticos de la aproximación de campo intenso (SFA) y la solución *ab initio* de la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo (TDSE).

Finalmente, comprobamos la aplicabilidad del SCM considerando también una configuración ortogonal de los campos y otros blancos como argón atómico desde la capa 3 e ión molecular  $H_2^+$  desde su estado fundamental. Dentro del SCM, la probabilidad de emisión se puede escribir como el producto de las interferencias temporales introducidas por los factores *intra-* e *interciclo*, y la distribución espacial del sistema a través

del factor  $\Gamma$  que incluye al elemento dipolar dentro del SCM. Logramos desacoplar la dependencia temporal de la distribución espacial, incluyendo las propiedades de simetría del elemento dipolar en el parámetro  $\kappa$  para el cálculo del factor *intraciclo*. Esta discriminación en la factorización nos permite predecir en determinadas direcciones de emisión qué órdenes de bandas laterales están presentes en el espectro del fotoelectrón, como así también explicar la probabilidad nula que se obtiene para ciertos valores de energía y ángulo.

Para concluir, en la presente tesis mostramos una forma simple y analítica para obtener la probabilidad de ionización en un proceso de fotoemisión por pulsos láser cortos a través del SCM. La ventaja de este modelo, es la interpretación física que se le puede dar a la probabilidad de ionización puesto que presenta la misma forma que la ecuación para una red de difracción pero en el dominio temporal. En ella, el factor *interciclo* actúa como una red de difracción de  $N$  rendijas, con el factor *intraciclo* actuando como el factor de difracción de cada rendija. Además, dentro del SCM se encuentra desacopladas las interferencias temporales (*intra-* e *interciclo*) de la distribución espacial del sistema (elemento dipolar), están desacopladas a la hora de analizar sistemas multielectrónicos. Esto último es de suma importancia, dado que contribuye significativamente a la obtención de resultados preliminares contrastables con mediciones experimentales resueltas en ángulo que utilicen valores de intensidad del láser altos. Por otra parte, para completar este estudio sería necesario incluir el potencial de Coulomb en el cálculo de la amplitud de transición dentro del SCM, para observar el efecto que tiene sobre el espectro del fotoelectrón, además de considerar otro tipo de polarización para los campos, como la circular. Esto último pone de manifiesto el dicroísmo que involucra la luz polarizada circularmente, es decir, la absorción diferencial de luz polarizada a la izquierda y a la derecha, el cual tiene una amplia gama de aplicaciones en la espectroscopía [78, 79].

# Apéndice A

## Unidades atómicas

El sistema de unidades atómicas de Hartree es utilizado en la física atómica por su simplicidad, y se define en relación a algunos valores del átomo de Hidrógeno como la masa  $m_e$ , la carga del electrón  $e$  y el radio de Bohr  $a_0$ . De esta manera, la unidad atómica de masa, carga y longitud se define a través de

- la masa del electrón:  $m_e = 9,11 \times 10^{-31}$  kg,
- la carga del electrón:  $e = 1,602 \times 10^{-19}$  C,
- el radio de Bohr:  $a_0 = 5,29 \times 10^{-11}$  m,

respectivamente. La constante de Planck es la unidad atómica de momento angular

$$\hbar = \frac{h}{2\pi} = 1,05 \times 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s} \quad (\text{A.1})$$

y la unidad atómica de tiempo está dada por  $t_0 = 2,42 \times 10^{-17}$  s = 24,2 as (attosegundos). Por lo tanto,

$$\underbrace{a_0}_{\text{unidad de longitud}} = \underbrace{m_e}_{\text{unidad de masa}} = \underbrace{e}_{\text{unidad de carga}} = \underbrace{\hbar}_{\text{unidad de momento angular}} = 1 \text{ u.a.} \quad (\text{A.2})$$

La constante de Coulomb resulta  $1/(4\pi\epsilon_0) = 1$  u.a., donde  $\epsilon_0$  es la permitividad el vacío. La velocidad de la luz cumple que  $\alpha c = 1$  u.a. donde la constante de estructura fina tiene el valor  $\alpha = 1/137$  adimensional. Además, de las relaciones de conversión dadas por

$$1 \text{ u.a.} = 27,21 \text{ eV} = 4,26 \times 10^{-18} \text{ J} \quad (\text{energía}) \quad (\text{A.3})$$

$$1 \text{ u.a.} = 6,44 \times 10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2} \quad (\text{intensidad}) \quad (\text{A.4})$$



## Apéndice B

# Modelo semiclásico para procesos ATI

Estamos interesados en calcular la probabilidad de emisión dentro del modelo semiclásico (SCM) para ionización del átomo de hidrógeno. Para ello, modelamos el campo eléctrico del pulso láser de la forma  $\mathbf{F}(t) = F_0 \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$  con  $F_0$  la amplitud y  $\omega$  la frecuencia. La matriz de transición en su forma *prior* dentro de la SFA está dada por la ec. (2.96),

$$T_{if}^- = -i \int_0^\tau dt d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) F(t) \exp[iS(t)], \quad (\text{B.1})$$

donde  $\tau$  es la duración del pulso láser,  $\mathbf{d}(\mathbf{v})$  el elemento de matriz dipolar dado por la ec. (2.95), que para el átomo de hidrógeno desde el  $1s$  resulta en

$$d_z(\mathbf{v}) = \mathbf{d}(\mathbf{v}) \cdot \mathbf{e}_z = -\frac{i2^{7/2}}{\pi} (2I_P)^{5/4} \frac{\mathbf{v} \cdot \mathbf{e}_z}{[\mathbf{v}^2 + 2I_P]^3}, \quad (\text{B.2})$$

y  $S(t)$  dada por la ec. (2.92).

Bajo la suposición de que la fase  $S(t)$  oscila rápidamente con el tiempo, hacemos uso de la aproximación del punto silla [80] donde una integral de la forma

$$I(\lambda) = \int_{-\infty}^{\infty} dx g(x) e^{i\lambda f(x)} \quad \text{con } \lambda \rightarrow \infty, \quad (\text{B.3})$$

se puede resolver aproximadamente considerando la fase  $\lambda f(x)$  estacionaria cuando  $d[\lambda f(x)]/dx|_{x_0} = 0$  y desarrollando la fase como una serie de Taylor alrededor del

punto silla  $x_0$ . Entonces, la integral dada por la ec. (B.3) se expresa como

$$\begin{aligned} I(\lambda) &\approx g(x_0) e^{i\lambda f(x_0)} \int_{-\infty}^{\infty} dx e^{\frac{i}{2}\lambda \ddot{f}(x_0)(x-x_0)^2} \\ &\approx \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda |\ddot{f}(x_0)|}} g(x_0) e^{i\{\lambda f(x_0) + \frac{\pi}{4} \text{sgn}[\ddot{f}(x_0)]\}}. \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

donde  $\ddot{f}(x) = \frac{d^2 f(x)}{dx^2}$ .

Comparando las ecuaciones (B.3) y (B.1) tenemos que, llamando  $g(x) = d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t))F(t)$  y  $\lambda f(x) = S(t)$ , la matriz de transición puede escribirse como una suma de términos del tipo de la ec. (B.4) sobre todos los puntos silla  $x_0$  (que denominaremos  $t_s$ ) donde se anula la derivada de la fase. Si a cada tiempo de ionización  $t_s$  que satisface  $\dot{S}(t_s) = 0$  se le asocia una trayectoria clásica del electrón emitido con momento final  $\mathbf{k}$ , entonces, la amplitud de transición se reescribe como una superposición coherente de trayectorias clásicas del electrón con momento final  $\mathbf{k}$  que son emitidas a un tiempo  $t_s$ , es decir,

$$T_{if}^- = \sum_{t_s} \frac{-i\sqrt{2\pi}F(t_s)}{|\ddot{S}(t_s)|^{1/2}} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s)) \exp \left\{ iS(t_s) + i\frac{\pi}{4} \text{sgn}[\ddot{S}(t_s)] \right\}, \quad (\text{B.5})$$

donde  $\ddot{S}(t_s) = \frac{d^2 S(t)}{dt^2}|_{t_s} = -[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s)] \cdot \mathbf{F}(t_s)$  y los tiempos de ionización  $t_s$  son soluciones de la ec. (3.14) dada por

$$\frac{[\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s)]^2}{2} = -I_P. \quad (\text{B.6})$$

Dentro del SMM los tiempos de ionización se toman reales, lo que implica que  $I_P = 0$  en la ec. (B.7) y de esta forma

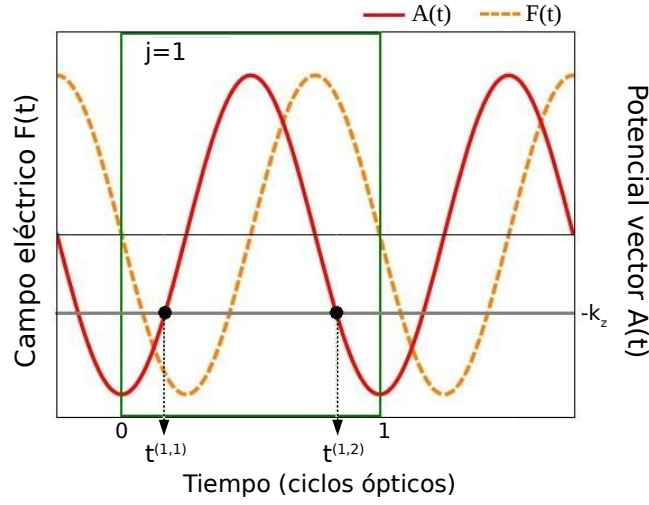
$$\mathbf{k} + \mathbf{A}(t_s) = 0. \quad (\text{B.7})$$

Por la simetría cilíndrica que presenta el sistema respecto de la dirección de incidencia del láser, vamos trabajar en coordenadas cilíndricas, de manera que el momento final del fotoelectrón está dado por  $\mathbf{k} = k_z \mathbf{e}_z + k_\perp \mathbf{e}_\perp$ . Para mayor simplicidad suponemos que la componente transversal del momento del electrón es nula, es decir,  $k_\perp = 0$ , y vamos a restringir nuestro análisis a la dirección de emisión hacia adelante  $k_z \geq 0$ . De manera que

$$A(t_s) = -k_z, \quad (\text{B.8})$$

con  $A(t) = -\frac{F_0}{\omega} \sin(\omega t)$  y donde los tiempos de ionización se pueden interpretar como la intersección entre la recta  $-k_z$  y el potencial vector del pulso  $A(t)$  como se muestra en la Fig. B.1.

Por lo tanto, existen dos tiempos de ionización por ciclo óptico del láser  $j$ : anterior y posterior, denotados por  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$ , respectivamente, donde  $t^{(j,\alpha)} = t^{(1,\alpha)} + (2\pi/\omega)(j -$



**Figura B.1:** Tiempos de emisión anterior y posterior  $t^{(j,1)}$  y  $t^{(j,2)}$  para un momento final dado  $k_z$  marcados por círculos en un ciclo de oscilación del láser IR. El ciclo óptico se indica a través de una celda.

1) con  $\alpha = 1, 2$ . Las expresiones para los tiempos de ionización pueden derivarse de la ec. (B.7) y están dados por

$$t^{(1,1)} = \frac{1}{\omega} \sin^{-1} \left[ \frac{\omega}{F_0} k_z \right], \quad t^{(1,2)} = \frac{2\pi}{\omega} - t^{(1,1)}. \quad (\text{B.9})$$

Por otra parte, es posible obtener los límites clásicos para el momento del fotoelectrón  $k_z$  siempre que  $|\frac{\omega}{F_0} k_z| < 1$ . Fuera de este límite los tiempos de ionización de la ec. (B.9) son complejos. Estos tiempos están asociados a trayectorias del electrón que no son clásicas cuya probabilidad será mucho mayor que las trayectorias clásicas. Por ello su contribución a la probabilidad de ionización es despreciada en nuestro análisis.

Utilizando los resultados obtenidos, podemos expresar la amplitud de transición dentro del SMM como

$$T_{if}^- = \sum_{j=1}^N \sum_{\alpha=1}^2 G(t^{(j,\alpha)}, \mathbf{k}) \exp \{ i S(t^{(j,\alpha)}) \} \quad (\text{B.10})$$

donde  $G(t^{(j,\alpha)}, \mathbf{k})$  es idéntica para todas las trayectorias del electrón y solamente es función del momento final  $\mathbf{k}$  dada por

$$G(t^{(j,\alpha)}, \mathbf{k}) = G(\mathbf{k}) = \frac{-i\sqrt{2\pi}F(t^{(j,\alpha)})}{| - [\mathbf{k} + \mathbf{A}(t^{(j,\alpha)})] \cdot \mathbf{F}(t^{(j,\alpha)}) |^{1/2}} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t^{(j,\alpha)})), \quad (\text{B.11})$$

por lo tanto la ec. (B.10) nos queda de la forma

$$T_{if}^- = G(\mathbf{k}) \sum_{j=1}^N \sum_{\alpha=1}^2 \exp \{iS(t^{(j,\alpha)})\}. \quad (\text{B.12})$$

Expandiendo la sumatoria sobre  $\alpha$  y operando, la ecuación (B.12) resulta

$$T_{if}^- = G(\mathbf{k}) \sum_{j=1}^N e^{i[\frac{S(t^{(j,1)})+S(t^{(j,2)})}{2}]} [e^{i[\frac{S(t^{(j,1)})-S(t^{(j,2)})}{2}]} + e^{-i[\frac{S(t^{(j,1)})-S(t^{(j,2)})}{2}]}], \quad (\text{B.13})$$

$$= G(\mathbf{k}) \sum_{j=1}^N e^{i\bar{S}_j} [e^{i\frac{\Delta S_j}{2}} + e^{-i\frac{\Delta S_j}{2}}], \quad (\text{B.14})$$

donde definimos la acción promedio  $\bar{S}_j = \frac{S(t^{(j,1)})+S(t^{(j,2)})}{2}$  y la acción acumulada  $\Delta S_j = S(t^{(j,1)}) - S(t^{(j,2)})$  entre los tiempos de emisión anterior y posterior en un ciclo.

De la ecuación (2.92),  $S(t)$  puede escribirse, a menos de una constante, como

$$S(t^{(j,\alpha)}) = \left[ \frac{k^2}{2} + I_P + U_P \right] t^{(j,\alpha)} + k_z \frac{F_0}{\omega^2} \cos(\omega t^{(j,\alpha)}) - \frac{1}{2\omega} U_P \sin(2\omega t^{(j,\alpha)}). \quad (\text{B.15})$$

donde  $U_P = (F_0/2\omega)^2$  para pulsos con envolvente constante. Utilizando las ecuaciones (B.9) y (B.15), la acción acumulada se puede escribir de la forma

$$\Delta S_j = \left[ \frac{k^2}{2} + I_P + U_P \right] \frac{1}{\omega} \left\{ 2 \sin^{-1} \left| \frac{\omega}{F_0} k_z \right| - \pi \right\} + \text{sgn}(k_z) \frac{3}{2} \frac{F_0 k_z}{\omega^2} \sqrt{1 - \left( \frac{\omega}{F_0} k_z \right)^2}, \quad (\text{B.16})$$

donde se observa que es independiente del número de ciclos  $j$ , por lo tanto  $\Delta S_j = \Delta S$ .

De la misma manera se puede calcular la acción promedio  $\bar{S}$ , encontrando que depende linealmente del índice del ciclo  $j$ ,

$$\bar{S} = S_0 + j\tilde{S}, \quad (\text{B.17})$$

donde  $S_0 = -\frac{\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + I_P + U_P \right) - \frac{F_0}{\omega^2} k_z$  y  $\tilde{S} = \frac{2\pi}{\omega} \left( \frac{k_z^2}{2} + I_P + U_P \right)$ .

Por último, reemplazando las ecs. (B.16) y (B.17) en la ec. (B.14), obtenemos que la matriz de transición se escribe como la ec. (3.19),

$$T_{if}^- = 2 G(\mathbf{k}) \cos \left( \frac{\Delta S}{2} \right) \frac{\sin(N\tilde{S}/2)}{\sin(\tilde{S}/2)} e^{i(S_0 + \frac{N+1}{2}\tilde{S})} \quad (\text{B.18})$$



y la distribución de momento del fotoelectrón como

$$\frac{dP}{d\mathbf{k}} = |T_{if}^-|^2 = 4\Gamma(\mathbf{k}) \cos^2\left(\frac{\Delta S}{2}\right) \left| \sum_{j=1}^N e^{i\tilde{S}j} \right|^2 \quad (\text{B.19})$$

$$= 4\Gamma(\mathbf{k}) \underbrace{\cos^2\left(\frac{\Delta S}{2}\right)}_{F(\mathbf{k})} \underbrace{\frac{\sin^2(N\tilde{S}/2)}{\sin^2(\tilde{S}/2)}}_{B(k)} \quad (\text{B.20})$$

donde  $\Gamma(\mathbf{k}) = |G(\mathbf{k})|^2$  es la tasa de ionización, la cual sólo depende del momento final del fotoelectrón, el término  $B(k)$  es el factor **interciclo**, el cual se construye al sumar las contribuciones de cada ciclo, y  $F(k)$  es el factor **intraciclo** que actúa como modulator del mismo. Asimismo, la ecuación (B.20) muestra una expresión analítica para la probabilidad de emisión como el producto de dos factores que involucran interferencias *intra-* e *interciclo* de trayectorias del electrón asociadas a dos tiempos de ionización dentro de un mismo ciclo óptico y aquellas asociadas con tiempos de emisión en diferentes ciclos. Se puede observar que cuando el número de ciclos  $N$  es muy grande, entonces

$$\frac{\sin^2(N\tilde{S}/2)}{\sin^2(\tilde{S}/2)} \xrightarrow{N \rightarrow \infty} \sum_n \delta\left(\frac{\tilde{S}}{2} - n\pi\right) \quad (\text{B.21})$$

De esta manera la probabilidad de emisión ocurre sólo cuando  $\tilde{S}/2 = n\pi$  con  $n$  un número entero cualquiera. Reemplazando el valor de  $\tilde{S}$  y resolviendo, obtenemos la ecuación para la conservación de la energía dada por la ec. (3.20):

$$E_n = n\omega - I_P - U_P. \quad (\text{B.22})$$

Por lo tanto el factor interciclo  $B(k)$  es el responsable de dar origen a picos equiespaciados por la energía del fotón del láser o picos ATI, cuya formación proviene de la interferencia temporal de las contribuciones a la ionización de los distintos ciclos del pulso. Esta explicación en el dominio temporal es equivalente a la idea de absorción de múltiples fotones.



## Apéndice C

### Cálculo de la fase $\Phi$ en el término de interferencia interpulso

Queremos extender el caso discutido en el Apéndice B para ionización atómica por un pulso  $\mathbf{F}(t) = F_0(t) \cos(\omega t) \mathbf{e}_z$  con envolvente dada por

$$F_0(t) = \begin{cases} F_1 & \text{si } 0 < t < t_1 \\ 0 & \text{si } t_1 < t < t_2 \\ F_2 & \text{si } t_2 < t < \tau \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

y cero fuera del intervalo temporal  $[0, \tau]$ .

Podemos escribir el pulso  $F(t)$  original como la contribución de dos pulsos de amplitudes  $F_1$  y  $F_2$ , separados entre sí por un retardo temporal  $\Delta t_{12} = t_2 - t_1$ , el cual involucra un número entero  $M$  de períodos del láser, como se muestra en la Fig. C.1

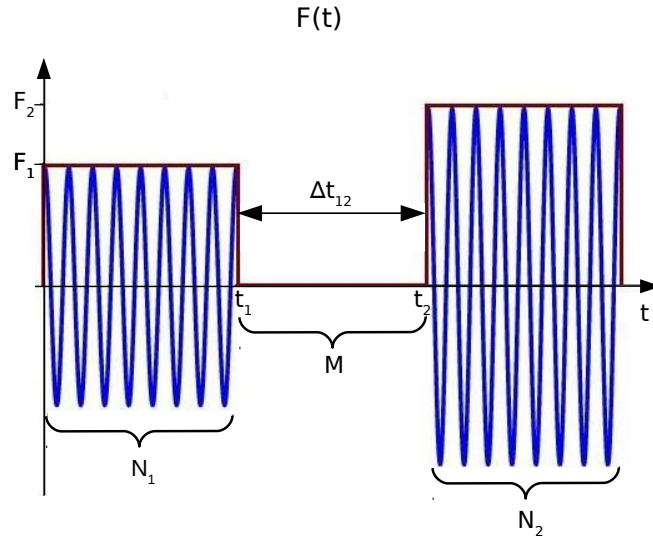
La amplitud de transición dada por la ec. (B.1) se puede reescribir como la suma de las amplitudes de ionización individuales correspondientes a cada componente del pulso

$$\begin{aligned} T_{if}^- &= -i \int_0^{t_1} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) F_1 \exp(iS(t)) - i \int_{t_2}^{\tau} d_z(\mathbf{k} + \mathbf{A}(t)) F_2 \exp(iS(t)), \\ &= T_1 + T_2 \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

donde la componente  $z$  del momento dipolar está dada por la ec. (B.2) y  $S(t)$  por la ec. (2.92). Por simplicidad, vamos a suponer que los tiempos  $t_1$ ,  $t_2$  y  $\tau$  involucran un número entero de ciclos del campo láser, esto es

$$\tau = NT, \quad t_1 = N_1 T, \quad t_2 = \tau - N_2 T. \quad (\text{C.3})$$

con  $T = 2\pi/\omega$ . Cada uno de los términos de la ec. (C.2) dentro del SMM, se escriben



**Figura C.1:** Campo eléctrico con envolvente definida por dos pulsos planos de diferentes amplitudes  $F_1$  y  $F_2$ , ec. (C.1), separadas por un intervalo temporal  $\Delta t_{12} = t_2 - t_1$ . Estos tiempos involucran un número entero de ciclos del láser contenidos en el primer pulso, el gap temporal y el segundo pulso, donde el período del láser está dado por  $T = 2\pi/\omega$  y  $t_1 = N_1T$ ,  $\Delta t_{12} = MT$  y  $t_2 = \tau - N_2T$ , respectivamente.

como

$$T_1 = 2G_1(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_1}{2}\right) e^{i\{S_{01} + \frac{N_1+1}{2}\tilde{S}_1\}} \frac{\sin(N_1\tilde{S}_1/2)}{\sin(\tilde{S}_1/2)}, \quad (\text{C.4})$$

$$T_2 = 2G_2(\mathbf{k}) \cos\left(\frac{\Delta S_2}{2}\right) e^{i\{S_{02} + \frac{N_2+1}{2}\tilde{S}_2\}} \frac{\sin(N_2\tilde{S}_2/2)}{\sin(\tilde{S}_2/2)}, \quad (\text{C.5})$$

donde definimos  $L = N_1 + M$  de manera que  $N_2 = N - L$ , y

$$\tilde{S}_i = \frac{2\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + I_P + U_{Pi} \right) \quad \text{y} \quad S_{0i} = C_i - \frac{\tilde{S}_i}{2} \quad \text{con} \quad i = 1, 2, \quad (\text{C.6})$$

$$\Delta S_1 = \left[ \frac{k^2}{2} + I_P + U_{P1} \right] \frac{2}{\omega} \left\{ \sin^{-1} \left| \frac{\omega}{F_0} k_z \right| - \pi \right\} + \frac{3}{2} \frac{F_0 k_z}{\omega^2} \sqrt{1 - \left( \frac{\omega}{F_0} k_z \right)^2}, \quad (\text{C.7})$$

$$\Delta S_2 = \frac{\pi}{\omega} \tilde{S}_2 (t_2^{(1,1)} - t_2^{(1,2)}) + \frac{3}{2} \frac{F_0 k_z}{\omega^2} \cos \omega t_2^{(1,1)} \quad (\text{C.8})$$

con  $U_{Pi} = (F_i/2\omega)^2$  para  $i = 1, 2$ , los parámetros  $C_1 = 0$  y  $C_2 = 2\pi \frac{[N_1 F_{01}^2 - L F_{02}^2]}{4\omega^3} - \frac{F_{02}}{\omega} k_z$  en la ec. (C.6) y  $t_2^{(1,\alpha)}$  con  $\alpha = 1, 2$  los tiempos de ionización correspondientes al pulso de amplitud  $F_2$ .

Como consideramos que el pulso total se puede expresar como la contribución de dos pulsos planos individuales de amplitud  $F_1$  y  $F_2$  [ver Fig. C.1], podemos calcular los tiempos de ionización para cada uno de ellos, de forma análoga a lo obtenido para el caso de un pulso plano en el Apéndice B. De esta manera los tiempos de

emisión asociados al primer pulso satisfacen la ecuación  $A_1(t_1^{(j,\alpha)}) = -k_z$  con  $\alpha = 1, 2$  y  $j = 1, \dots, N_1$ , mientras que los tiempos asociados al segundo pulso satisfacen la ecuación  $A_2(t_2^{(j',\alpha)}) = -k_z$  con  $j' = L + 1, \dots, N_2$ , para  $A_i(t) = -\frac{F_i}{\omega} \sin(\omega t)$ .

Tomando el módulo cuadrado de la ec. (C.2), obtenemos la probabilidad de emisión, dada por

$$|T_{if}^-|^2 = |T_1 + T_2|^2 = |T_1|^2 + |T_2|^2 + |T_1 T_2^* + T_1^* T_2| \quad (\text{C.9})$$

donde  $*$  indica el complejo conjugado. Por lo tanto, la ecuación (C.9) se puede expresar como la suma de las amplitudes de ionización correspondientes a cada uno de los pulsos, más un término que involucra la interferencia entre los dos pulsos, dada por

$$T_1 T_2^* + T_1^* T_2 = 2|T_1||T_2| \cos \Phi. \quad (\text{C.10})$$

El valor de esta fase  $\Phi$  se obtiene reemplazando las expresiones dadas por las ecs. (C.4) y (C.5) en la ecuación (C.9). Por lo tanto,

$$\Phi = S_{01} - S_{02} + \frac{N_1 + 1}{2} \tilde{S}_1 - \frac{N_2 + 1}{2} \tilde{S}_2, \quad (\text{C.11})$$

que junto a las ecuaciones (C.6), después de un poco de álgebra obtenemos

$$\begin{aligned} \Phi = & N_1 \frac{\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + I_P + U_{P1} \right) + N_2 \frac{\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + I_P + U_{P2} \right) + \frac{2\pi}{\omega} (L - N_1) \left( \frac{k^2}{2} + I_P \right) + \\ & \frac{k_z}{\omega^2} (F_1 - F_2). \end{aligned} \quad (\text{C.12})$$

Reconociendo  $\frac{2\pi}{\omega} (L - N_1) = t_2 - t_1 = \Delta t_{12}$ , obtenemos la ec. (3.22)

$$\Phi = N_1 \frac{\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + I_P + U_{P1} \right) + N_2 \frac{\pi}{\omega} \left( \frac{k^2}{2} + I_P + U_{P2} \right) + \Delta t_{12} \left( \frac{k^2}{2} + I_P \right) + \frac{k_z}{\omega^2} (F_1 - F_2), \quad (\text{C.13})$$

por lo tanto, la probabilidad de ionización total se puede escribir como la suma de la ionización producida por cada pulso individual más un término de interferencia entre ambos pulsos que denominamos *interpulso* [ver ec. (3.21)].



# Apéndice D

## Soft photon approximation (SPA)

Vamos a mostrar en qué consiste la soft photon approximation (SPA), la cual es una aproximación basada en la SFA y muy utilizada en el ámbito experimental ya que reproduce con bastante precisión las secciones eficaces integradas en ángulo para procesos de fotoionización asistidos por láser (XUV +IR). En ella se considera que ambos campos tienen duración infinita y que la frecuencia del fotón IR ( $\omega_L$ ) es pequeña comparada con la energía del fotoelectrón ( $\omega_X - I_P$ ). Para ello, vamos a seguir el desarrollo de Maquet y Taïeb [64] luego continuado por Jimenez *et. al* [71] para la fotoionización del átomo de hidrógeno por absorción de un fotón del XUV en presencia de un campo láser IR.

La amplitud de transición  $S$  entre un estado inicial dado por el estado fundamental y un estado final en el continuo considerando ambos pulsos XUV e IR linealmente polarizados en  $\mathbf{e}_z$ , se escribe, de acuerdo a la ec. (2.83), como

$$S = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle \chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t) | \mathbf{A}_X(t) \cdot \mathbf{p} | \phi_i(\mathbf{r}, t) \rangle \quad (\text{D.1})$$

donde la perturbación está dada por el hamiltoniano de interacción en el gauge de velocidad [ec. (2.48)] con el potencial vector del pulso XUV modelado como  $\mathbf{A}_X(t) = A_{X0} \exp[-i(\omega_X t + \phi_X)] \mathbf{e}_z$  y  $\mathbf{p}$  el operador de momento. Para los estados inicial y final del sistema dados por  $\phi_i(\mathbf{r}, t)$  y  $\chi_{DW,f}^-(\mathbf{r}, t)$ , respectivamente, elegimos el estado fundamental del átomo de hidrógeno y la función de onda de Gordon-Volkov  $\chi_{\mathbf{k}}^v(\mathbf{r}, t)$  de la ec. (2.58), dados por

$$\phi_i(\mathbf{r}, t) = e^{iI_P t} \varphi_i(\mathbf{r}) \quad (\text{D.2})$$

$$\chi_{\mathbf{k}}^v(\mathbf{r}, t) = (2\pi)^{-3/2} \exp\{i\mathbf{k} \cdot [\mathbf{r} - \boldsymbol{\alpha}(t)] - ik^2 t/2\}. \quad (\text{D.3})$$

donde  $\boldsymbol{\alpha}(t) = \boldsymbol{\alpha}_{L0} \sin(\omega_L t + \phi_L)$  es el vector de desplazamiento introducido en la ec. (2.31) y  $\boldsymbol{\alpha}_{L0} = \mathbf{F}_{L0}/\omega_L^2$ .

Reemplazando las ecs. (D.2) y (D.3) en la ec. (D.1), podemos reescribir la amplitud

de transición de la forma

$$S = -iA_{X0} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\alpha(t) \cdot \mathbf{k}} e^{\{i[k^2/2 - \omega_X + I_P]t\}} e^{-i\phi_X} \underbrace{\mathbf{e}_z \cdot \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} \int d^3r e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \mathbf{p} \varphi_i(\mathbf{r})}_{d_z^v(\mathbf{k})} \quad (\text{D.4})$$

donde el término  $d_z^v(\mathbf{k}) = \mathbf{e}_z \cdot \langle f | \mathbf{p} | i \rangle$  representa el elemento dipolar en el gauge de velocidad, el cual para el átomo de hidrógeno desde el estado fundamental, está dado por

$$d_z^v(\mathbf{k}) = \frac{2\sqrt{2}(2I_P)^{5/4}}{\pi[k^2 + (2I_P)]^2} k \cos \theta. \quad (\text{D.5})$$

Por otra parte, haciendo uso de la expansión de Jacobi-Anger:  $e^{iz \sin \lambda} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(z) e^{in\lambda}$  en la fase  $e^{i\alpha(t) \cdot \mathbf{k}}$  de la ec. (D.4), podemos escribir

$$e^{i\alpha(t) \cdot \mathbf{k}} = e^{\underbrace{i\alpha_{L0} \cdot \mathbf{k} \sin(\omega_L t + \phi_L)}_{\lambda}} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\alpha_{L0} \cdot \mathbf{k}) e^{in(\omega_L t + \phi_L)}. \quad (\text{D.6})$$

Reemplazando la ec. (D.6) en (D.4), obtenemos que

$$\begin{aligned} S &= -iA_{X0} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\alpha_{L0} k \cos \theta) e^{-i(\phi_X - n\phi_L)} d_z^v(\mathbf{k}) \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp \{i[k^2/2 - (\omega_X - I_P - n\omega_L)]t\} \end{aligned} \quad (\text{D.7})$$

y utilizando la identidad  $J_{-n}(z) = (-1)^n J_n(z)$  la ecuación (D.7) se puede reescribir como

$$S = -iA_{X0} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_{-n}(\alpha_{L0} k \cos \theta) e^{-i(\phi_X + n\phi_L)} d_z^v(\mathbf{k}) \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp \{i[k^2/2 - (\omega_X - I_P + n\omega_L)]t\} \quad (\text{D.8})$$

donde la integral temporal de la última ecuación es la función delta  $2\pi\delta[E - (\omega_X - I_P + n\omega_L)]$ . Por otra parte, considerando que los campos XUV e IR tienen fase  $\phi_X = \phi_L = 0$ , la última ecuación se simplifica a

$$S = -i2\pi A_{X0} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_{-n}(\alpha_{L0} k \cos \theta) d_z^v(\mathbf{k}) \delta[E - (\omega_X - I_P + n\omega_L)]. \quad (\text{D.9})$$

Luego, la probabilidad de emisión se calcula como

$$\frac{dP}{dE d\cos \theta} = 2\pi k |S|^2, \quad (\text{D.10})$$



la cual es distinta de cero para valores de energía dados por

$$E_n = \omega_X - I_P + n\omega_L, \quad (\text{D.11})$$

donde  $n$  está asociado con el número de fotones del láser intercambiados en el proceso, con  $n > 0$  para absorción y  $n < 0$  para emisión. Esta ecuación determina las posiciones de las bandas laterales. Como notamos en el capítulo 3, de acuerdo a la definición que utilizamos para la función de onda de Volkov en el gauge de velocidad [ec. (3.6)], no se considera la contribución de la energía ponderomotriz  $U_P$  en el balance de energía. Por lo tanto, para poder comparar con los resultados de esta tesis que están en el gauge de longitud introducimos explícitamente el corrimiento por  $U_P$  en la ecuación (D.11), de manera que en lugar de considerar  $k = \sqrt{2E_n}$  consideraremos  $k = \sqrt{2E'_n}$  con

$$E'_n = \omega_X - I_P - U_P + n\omega_L. \quad (\text{D.12})$$

Finalmente, la SPA sólo contribuye para valores finitos de energía dados por  $E'_n$ , donde para cada uno de esos valores se tiene que el módulo cuadrado de la amplitud de transición está dado por

$$|S(E'_n)|^2 = \left| 2\pi A_{X0} J_n(A_{L0} \sqrt{2E'_n} \cos \theta) d_z^v(\mathbf{k}) \right|^2. \quad (\text{D.13})$$

Para obtener la ecuación (D.13) utilizamos la identidad  $J_{-n}(z) = (-1)^n J_n(z)$ . La ecuación (D.13) es la responsable de dar las alturas de las bandas laterales en valores de energía dados por la ec. (D.12) y es comparable al factor intraciclo  $F(\mathbf{k})$  de la ec. (4.36) que obtenemos dentro del SCM, el cual se encarga de modular las bandas laterales.



# Bibliografía

- [1] Maiman, T. H. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, **187** (4736), 493–494, 1960. [1](#)
- [2] Brabec, T., Krausz, F. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, **72**, 545–591, Abril 2000. [1](#)
- [3] Drescher, M., Hentschel, M., Kienberger, R., Tempea, G., Spielmann, C., Reider, G. A., *et al.* X-ray pulses approaching the attosecond frontier. **291** (5510), 1923–1927, 2001. [1](#), [2](#)
- [4] Lamb, W. E. Theory of an optical maser. *Phys. Rev.*, **134**, A1429–A1450, Junio 1964. [1](#)
- [5] Ferray, M., L’Huillier, A., Li, X. F., Lompre, L. A., Mainfray, G., Manus, C. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **21** (3), L31. [2](#)
- [6] Paul, P. M., Toma, E. S., Breger, P., Mullot, G., Augé, F., Balcou, P., *et al.* Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. **292** (5522), 1689–1692, 2001. [2](#)
- [7] Corkum, P. B., Krausz, F. Attosecond science. *Nature Physics*, **3**, 381 EP –, Junio 2007. Review Article. [2](#)
- [8] Goulielmakis, E., Loh, Z.-H., Wirth, A., Santra, R., Rohringer, N., Yakovlev, V. S., *et al.* Real-time observation of valence electron motion. *Nature*, **466**, 739 EP –, Agosto 2010.
- [9] Krausz, F., Stockman, M. I. Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing. *Nature Photonics*, **8**, 205 EP –, Febrero 2014. Review Article. [2](#)
- [10] Xu, L., Spielmann, C., Poppe, A., Brabec, T., Krausz, F., Hänsch, T. W. Route to phase control of ultrashort light pulses. *Opt. Lett.*, **21** (24), 2008–2010, Diciembre 1996. [2](#)

- [11] Baltuska, A., Udem, T., Uiberacker, M., Hentschel, M., Goulielmakis, E., Gohle, C., *et al.* Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, **421**, 611 EP –, Febrero 2003. [2](#)
- [12] Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, **56** (3), 219 – 221, 1985. [2](#)
- [13] Strickland, D., Mourou, G., Ashkin, A. The nobel prize in physics, 2018. [2](#)
- [14] Fernández, B., Tobalina, I., Varillas, R., A., S., Jarque, E., Gonzáles, A., *et al.* El láser, la luz de nuestros tiempos. Universidad de Salamanca, 2010. [2](#)
- [15] Einstein, A. ber einen die erzeugung und verwandlung des liches betreffenden heuristischen gesichtspunkt. *Annalen der Physik*, **322** (6), 132–148. [3](#)
- [16] Damon, E. K., Tomlinson, R. G. Observation of ionization of gases by a ruby laser. *Appl. Opt.*, **2** (5), 546–547, Mayo 1963. [3](#)
- [17] Voronov, G. S., Delone, N. B. Many-photon Ionization of the Xenon Atom by Ruby Laser Radiation. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **23**, 54, 1966. [3](#)
- [18] Agostini, P., Barjot, G., Bonnal, J., Mainfray, G., Manus, C., Morellec, J. Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **4** (10), 667–669, Octubre 1968. [3](#)
- [19] Agostini, P., Fabre, F., Mainfray, G., Petite, G., Rahman, N. K. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys. Rev. Lett.*, **42**, 1127–1130, Abril 1979. [3](#), [31](#)
- [20] Petite, G., Agostini, P., Muller, H. G. Intensity dependence of non-perturbative above-threshold ionisation spectra: experimental study. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **21** (24), 4097. [3](#), [4](#)
- [21] Cohen-Tannoudji, C., Gury-Odelin, D. Advances in Atomic Physics. World Scientific, 2011. [5](#)
- [22] Above-threshold ionization. *Physics Reports*, **204** (5), 331 – 383, 1991. [5](#)
- [23] Agostini, P., Kupersztych, J., Lompré, L. A., Petite, G., Yergeau, F. m. c. Direct evidence of ponderomotive effects via laser pulse duration in above-threshold ionization. *Phys. Rev. A*, **36**, 4111–4114, Octubre 1987. [5](#)
- [24] van de Sand, G., Rost, J. M. Semiclassical description of multiphoton processes. *Phys. Rev. A*, **62**, 053403, Octubre 2000. [6](#)

- [25] Keldysh, L. V. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **47**, 1945, 1964. [6](#)
- [26] Kulander, K. C., Schafer, K. J., Krause, J. L. Dynamics of Short-Pulse Excitation, Ionization and Harmonic Conversion, págs. 95–110. Boston, MA: Springer US, 1993. [7](#)
- [27] Corkum, P. B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1994–1997, Septiembre 1993. [7](#)
- [28] Krausz, F., Ivanov, M. Attosecond physics. *Rev. Mod. Phys.*, **81**, 163–234, Febrero 2009. [7](#)
- [29] Itatani, J., Quéré, F., Yudin, G. L., Ivanov, M. Y., Krausz, F., Corkum, P. B. Attosecond streak camera. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 173903, Abril 2002. [8](#)
- [30] Swoboda, M., Dahlström, J. M., Ruchon, T., Johnsson, P., Mauritsson, J., L’Huillier, A., *et al.* Intensity dependence of laser-assisted attosecond photoionization spectra. *Laser Physics*, **19** (8), 1591–1599, 2009. [8](#)
- [31] Jiménez-Galán, A., Martín, F., Argenti, L. Two-photon finite-pulse model for resonant transitions in attosecond experiments. *Phys. Rev. A*, **93**, 023429, Febrero 2016. [8](#)
- [32] Joachain, C. J., Kylstra, N. J., Potvliege, R. M. Atoms in Intense Laser Fields. Cambridge University Press, 2011. [11](#), [15](#)
- [33] Der comptoneffekt nach der schrödingerschen theorie. *Zeitschrift fr Physik*, **40** (1-2), 1926. [21](#), [32](#)
- [34] Wolkow, D. M. Über eine klasse von lösungen der diracschen gleichung. *Zeitschrift für Physik*, **94** (3), 250–260, Marzo 1935. [21](#)
- [35] Macri, P. A., Miraglia, J. E., Gravielle, M. S. Ionization of hydrogen targets by short laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, **20** (9), 1801–1806, Septiembre 2003. [25](#)
- [36] Gravielle, M. S. Captura electrónica en colisiones atómicas a energías altas e intermedias. Tesis Doctoral, Grupo de Colisiones Atómicas. Instituto de Astronomía y Física del Espacio. Universidad de Buenos Aires, Diciembre 1991. [26](#)
- [37] Duchateau, G., Cormier, E., Gayet, R. A simple non-perturbative approach of atom ionisation by intense and ultra-short laser pulses. [28](#)
- [38] Duchateau, G., Cormier, E., Bachau, H., Gayet, R. Coulomb-volkov approach of atom ionization by intense and ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. A*, **63**, 053411, Abril 2001. [28](#)

- [39] Chirilă, C. C., Potvliege, R. M. Low-order above-threshold ionization in intense few-cycle laser pulses. *Phys. Rev. A*, **71**, 021402, Febrero 2005. [29](#), [54](#)
- [40] Corkum, P. B., Burnett, N. H., Ivanov, M. Y. Subfemtosecond pulses. *Opt. Lett.*, **19** (22), 1870–1872, Noviembre 1994.
- [41] Ivanov, M., Corkum, P. B., Zuo, T., Bandrauk, A. Routes to control of intense-field atomic polarizability. *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 2933–2936, Abril 1995.
- [42] Lewenstein, M., Kulander, K. C., Schafer, K. J., Bucksbaum, P. H. Rings in above-threshold ionization: A quasiclassical analysis. *Phys. Rev. A*, **51**, 1495–1507, Febrero 1995. [29](#), [54](#)
- [43] Arbó, D. G., Ishikawa, K. L., Schiessl, K., Persson, E., Burgdörfer, J. Intracycle and intercycle interferences in above-threshold ionization: The time grating. *Phys. Rev. A*, **81**, 021403, Febrero 2010. [30](#), [37](#), [53](#), [70](#)
- [44] Arbó, D. G., Ishikawa, K. L., Schiessl, K., Persson, E., Burgdörfer, J. Diffraction at a time grating in above-threshold ionization: The influence of the Coulomb potential. *Phys. Rev. A*, **82** (4), 043426, 2010. [37](#), [53](#), [70](#)
- [45] Arbó, D. G., Nagele, S., Tong, X.-M., Xie, X., Kitzler, M., Burgdörfer, J. Interference of electron wave packets in atomic ionization by subcycle sculpted laser pulses. *Phys. Rev. A*, **89**, 043414, Abril 2014. [30](#), [68](#)
- [46] Di Mauro, L. F., Agostini, P. Ionization dynamics in strong laser fields, *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, tomo 35. Academic Press, 1995. [31](#)
- [47] Wickenhauser, M., Burgdörfer, J., Krausz, F., Drescher, M. Attosecond streaking of overlapping fano resonances. *Journal of Modern Optics*, **53** (1-2), 247–257, 2006. [32](#), [45](#)
- [48] Über eine klasse von lösungen der diracschen gleichung. *Zeitschrift für Physik*, **94** (3-4), 1935. [32](#)
- [49] Theoretical study of multiple high-order harmonic generation by intense ultrashort pulsed laser fields: A new generalized pseudospectral time-dependent method. *Chemical Physics*, **217** (2), 119 – 130, 1997. *Dynamics of Driven Quantum Systems*. [45](#), [63](#), [77](#), [90](#)
- [50] Tong, X.-M., Chu, S.-I. Time-dependent approach to high-resolution spectroscopy and quantum dynamics of rydberg atoms in crossed magnetic and electric fields. *Phys. Rev. A*, **61**, 031401, Febrero 2000. [63](#), [77](#), [90](#)

- [51] Arbó, D. G., Yoshida, S., Persson, E., Dimitriou, K. I., Burgdörfer, J. Interference Oscillations in the Angular Distribution of Laser-Ionized Electrons near Ionization Threshold. *Physical Review Letters*, **96** (14), 143003, 2006. [45](#), [68](#)
- [52] Radcliffe, P., Arbeiter, M., Li, W. B., Düsterer, S., Redlin, H., Hayden, P., *et al.* Atomic photoionization in combined intense xuv free-electron and infrared laser fields. *New Journal of Physics*, **14** (4), 043008. [48](#)
- [53] Kienberger, R., Goulielmakis, E., Uiberacker, M., Baltuska, A., Yakovlev, V., Bammer, F., *et al.* Atomic transient recorder. *Nature*, **427**, 817 EP –, Febrero 2004. [50](#)
- [54] Drescher, M., Krausz, F. Attosecond physics: facing the wave particle duality. *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, **38**, S727–S740, 2005. [51](#)
- [55] Della Picca, R., Fiol, J., Fainstein, P. D. Factorization of laser pulse ionization probabilities in the multiphotonic regime. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **46** (17), 175603. [52](#)
- [56] Gramajo, A. A., Della Picca, R., Garibotti, C. R., Arbó, D. G. Intra- and intercycle interference of electron emissions in laser-assisted xuv atomic ionization. *Phys. Rev. A*, **94**, 053404, Noviembre 2016. [56](#), [65](#), [66](#), [73](#), [88](#), [92](#)
- [57] Gramajo, A. A., Della Picca, R., Arbó, D. G. Electron emission perpendicular to the polarization direction in laser-assisted xuv atomic ionization. *Phys. Rev. A*, **96**, 023414, Agosto 2017. [56](#), [65](#), [66](#), [85](#)
- [58] Arbó, D. G., Miraglia, J. E., Gravielle, M. S., Schiessl, K., Persson, E., Burgdörfer, J. Coulomb-Volkov approximation for near-threshold ionization by short laser pulses. , **77** (1), 013401, 2008. [65](#), [68](#)
- [59] Nagele, S., Pazourek, R., Feist, J., Doblhoff-Dier, K., Lemell, C., Tokési, K., *et al.* Time-resolved photoemission by attosecond streaking: extraction of time information. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **44** (8), 081001. [68](#)
- [60] Kazansky, A. K., Kabachnik, N. M. Sideband structure in angle-resolved electron spectra from laser-assisted auger decay generated by ultra-short pulses. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **42** (12), 121002. [74](#)
- [61] Kazansky, A. K., Kabachnik, N. M. On the gross structure of sidebands in the spectra of laser-assisted auger decay. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **43** (3), 035601. [74](#), [78](#), [79](#), [99](#), [100](#), [121](#)

- [62] Bivona, S., Bonanno, G., Burlon, R., Leone, C. Two-color ionization of hydrogen by short intense pulses. *Laser Physics*, **20** (12), 2036–2044, 2010. [74](#), [78](#), [79](#), [99](#)
- [63] Kazansky, A. K., Sazhina, I. P., Kabachnik, N. M. Angle-resolved electron spectra in short-pulse two-color xuv+ir photoionization of atoms. *Phys. Rev. A*, **82**, 033420, Septiembre 2010. [78](#), [79](#), [99](#), [100](#), [121](#)
- [64] Maquet, A., Taïeb, R. Two-colour ir+xuv spectroscopies: the soft-photon approximation. *Journal of Modern Optics*, **54** (13-15), 1847–1857, 2007. [78](#), [79](#), [97](#), [120](#), [135](#)
- [65] Meyer, M., Cubaynes, D., O’Keeffe, P., Luna, H., Yeates, P., Kennedy, E. T., *et al.* Two-color photoionization in xuv free-electron and visible laser fields. *Phys. Rev. A*, **74**, 011401, Julio 2006. [79](#)
- [66] Meyer, M., Cubaynes, D., Glijer, D., Dardis, J., Hayden, P., Hough, P., *et al.* Polarization control in two-color above-threshold ionization of atomic helium. *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 193002, Noviembre 2008.
- [67] Meyer, M. Two-color photoionization of atoms in low and high radiation fields. *Journal of Physics: Conference Series*, **212** (1), 012018.
- [68] O’Keeffe, P., López-Martens, R., Mauritsson, J., Johansson, A., L’Huillier, A., Vénier, V., *et al.* Polarization effects in two-photon nonresonant ionization of argon with extreme-ultraviolet and infrared femtosecond pulses. *Phys. Rev. A*, **69**, 051401, Mayo 2004.
- [69] Düsterer, S., Hartmann, G., Babies, F., Beckmann, A., Brenner, G., Buck, J., *et al.* Angle resolved photoelectron spectroscopy of two-color xuv+nir ionization with polarization control. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **49** (16), 165003. [118](#)
- [70] Hayden, P., Dardis, J., Hough, P., Richardson, V., Kennedy, E. T., Costello, J. T., *et al.* The laser-assisted photoelectric effect of he, ne, ar and xe in intense extreme ultraviolet and infrared laser fields. *Journal of Modern Optics*, **63** (4), 358–366, 2016. [79](#)
- [71] Jiménez-Galán, A., Argenti, L., Martín, F. The soft-photon approximation in infrared-laser-assisted atomic ionization by extreme-ultraviolet attosecond-pulse trains. *New Journal of Physics*, **15** (11), 113009. [97](#), [99](#), [120](#), [135](#)
- [72] Kazansky, A. K., Grigorieva, A. V., Kabachnik, N. M. Dichroism in short-pulse two-color xuv plus ir multiphoton ionization of atoms. *Phys. Rev. A*, **85**, 053409, Mayo 2012. [99](#), [121](#)



- [73] Kazansky, A. K., Bozhevolnov, A. V., Sazhina, I. P., Kabachnik, N. M. Circular dichroism in xuv + ir multiphoton ionization of atoms. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **47** (6), 065602. [99](#), [121](#)
- [74] H Bransden, B., Joachain, C. Physics of Atoms and Molecules. Prentice Hall, 2014. [112](#)
- [75] Gramajo, A. A., Picca, R. D., López, S. D., Arbó, D. G. Intra- and intercycle interference of angle-resolved electron emission in laser-assisted xuv atomic ionization. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **51** (5), 055603. [117](#)
- [76] Düsterer, S., Rading, L., Johnsson, P., Rouzée, A., Hundertmark, A., Vrakking, M. J. J., *et al.* Interference in the angular distribution of photoelectrons in superimposed xuv and optical laser fields. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **46** (16), 164026. [118](#)
- [77] Haber, L. H., Doughty, B., Leone, S. R. Time-resolved photoelectron angular distributions and cross-section ratios of two-colour two-photon above threshold ionization of helium. *Molecular Physics*, **108** (7-9), 1241–1251, 2010. [118](#)
- [78] Mazza, T., Ilchen, M., Rafipoor, A. J., Callegari, C., Finetti, P., Plekan, O., *et al.* Determining the polarization state of an extreme ultraviolet free-electron laser beam using atomic circular dichroism. *Nature Communications*, **5**, 3648, 2014. [122](#)
- [79] Dichroism in the photoionisation of atoms at {XUV} free-electron lasers. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, **204**, Part B, 313 – 321, 2015. [122](#)
- [80] Courant, R., Hilbert, D. Methods of Mathematical Physics. Wiley-VCH, 1953. [125](#)



# Publicaciones asociadas

1. Non-constant ponderomotive energy in above threshold ionization by intense few-cycle laser pulses, R. Della Picca, A. A. Gramajo, D. G. Arbó, S. D. López, y C. R. Garibotti, Journal of Physics: Conference Series 635, 092091 (2015).
2. Non-constant ponderomotive energy in above threshold ionization by intense short laser pulses, R. Della Picca, A. A. Gramajo, C. R. Garibotti, S. D. López, and D. G. Arbó, Phys. Rev. A 93, 023419, 2015.
3. Intra- and intercycle interference o electron emissions in laser assisted XUV atomic ionization, A. A. Gramajo, R. Della Picca, C. R. Garibotti and D. G. Arbó, Phys. Rev. A 94, 053404, 2016.
4. Electron emission perpendicular to the polarization direction in laser-assisted XUV atomic ionization, A. A. Gramajo, R. Della Picca, and D. G. Arbó, Phys. Rev. A 96, 023414, 2017.
5. Intracycle interference in laser assisted XUV atomic hydrogen ionization, A. A. Gramajo, R. Della Picca, C. R. Garibotti y D. G. Arbó, Journal of Physics: Conference Series 875, 022018 (2017).
6. Intra- and intercycle interference of angle-resolved electron emission in laser-assisted XUV atomic ionization, A. A. Gramajo, R. Della Picca, S. D López and D. G. Arbó, J. Phys. B: At. Mol. Opt Phys 51, 055603, 2018.



# Agradecimientos

Quiero agradecer en esta tesis profundamente a todas las personas que estuvieron involucradas en el crecimiento personal y académico que experimenté a lo largo de todos estos años.

A aquellas personas que aparecieron en el momento justo, que permanecieron a mi lado y quienes fueron incondicionales en momentos de angustia y alegría a lo largo de todos estos años.

A aquellas personas que ya no están, pero que llegaron a mi vida en un momento dado, valoré, compartí, aprendí y crecí mucho con ellos.

A mi familia, en especial a mi mamá, de quien siempre tengo presente que hay que perseverar frente a cualquier adversidad y que nunca hay que rendirse.

Quiero agradecer a mis amigos de la vida y del instituto, sin entrar en detalles con nombres para no olvidarme de ninguno, con quienes formé una buena amistad y quienes básicamente vivieron conmigo este doctorado, brindandome su tiempo y contención.

Quiero agradecer profundamente a Esteban, mi compañero querido del día a día para aventuras y desventuras a lo largo de esta última etapa del doctorado.

Quiero agradecer a mis amigas ashtanguis, ya que en la práctica no sólo encontré bienestar físico y mental, sino compañeras que me motivaron a ser reflexiva, compasiva y amorosa conmigo misma.

Agradezco a mi directora y co-director por el acompañamiento académico que tuve de ellos, fueron mi ejemplo de constancia en el trabajo y dedicación.

A todo el personal administrativo y docente del Instituto Balseiro, por su disponibilidad y buena predisposición ante cualquier inconveniente o duda.

A CONICET por haberme permitido, a través de una beca de formación, poder realizar un doctorado.

